N° d'ordre: 33

T H E S E

présentée

à la FACULTE DES SCIENCES de l'UNIVERSITE DE LYON

pour obtenir

le DIPLOME de DOCTEUR de TROISIEME CYCLE
DE CATALYSE

par

Maurice FARON

Ingénieur-Chimiste E.S.C.I.L.
Licencié ès Sciences

CONTRIBUTION A L'ETUDE ET A LA REALISATION DES VIDES TRES ÉLEVÉS

Soutenue le 23 Janvier 1960
~~Soutenue le 12 Décembre 1959~~
devant la Commission d'examen

MM. M. PRETTRE — Président

S. TEICHNER)
J-C. MERLIN) — Examinateurs

N° d'ordre: 33

T H E S E

présentée

à la FACULTE DES SCIENCES de l'UNIVERSITE DE LYON

pour obtenir

le DIPLOME de DOCTEUR de TROISIEME CYCLE
DE CATALYSE

par

Maurice FARON

Ingénieur-Chimiste E.S.C.I.L.
Licencié ès Sciences

CONTRIBUTION A L'ETUDE ET A LA REALISATION DES VIDES TRES ÉLEVÉS

Soutenue le 23 Janvier 1960
~~Soutenue le 12 Décembre 1959~~
devant la Commission d'examen

MM. M. PRETTRE		Président
S. TEICHNER	)	Examinateurs
J-C. MERLIN	)	

398/62

R. UNIV.
BIBLIOTHEEK
LEIDEN

UNIVERSITE DE LYON - FACULTE DES SCIENCES

Doyens Honoraires

M. LONGCHAMBON
M. DOUIN

Professeurs Honoraires

MM. LOCQUIN
de LAREMBERGUE
DOEUVRE
SOLLAUD
MENTZER

Doyen

M. MOUSSA

Assesseur

M. PRETTRE

Professeurs

MM. LONGCHAMBON	Minéralogie
DOUIN	Botanique
DEJARDIN	Physique générale
THIBAUD	Physique nucléaire
EYRAUD H.	Calcul différentiel et intégral
PRETTRE	Chimie industrielle
COURTY	Chimie-Physique
KÜHNER	Microbiologie et Mycologie
CORDIER	Physiologie
MALECOT	Mécanique rationnelle et appliquée
PARIS	Chimie minérale
AUMERAS	Chimie
COLONGE	Chimie organique
JANIN	Physique générale
FLANDRIN	Géologie appliquée
BERNARD	Physique industrielle
DUFAY	Directeur de l'Observatoire, Astronomie
NIGON	Zoologie expérimentale
GAUTHIER H.	Géologie
MOUSSA	Chimie nucléaire
VIRET	Géologie
WAUTIER	Zoologie
CHOPIN	Chimie biologique

Professeurs sans Chaire

MM. BRACONNIER	Mathématiques
CUEILLERON	Chimie
BOUTILLIER	Minéralogie
BOIDIN	Botanique
JAFFARD	Mathématiques
EYRAUD Ch.	Chimie minérale
TORTRAT	Mathématiques
MESNARD	Physique

Maîtres de Conférences

MM.	LAFOUCRIERE	Physique nucléaire
	LAVIOLETTE	Zoologie
	GRANDMONTAGNE	Physique
	GIGOUT	Géologie
	TEICHNER	Chimie industrielle
	DEPRAZ	Physique nucléaire
	DREUX	Chimie organique et S.P.C.N.
	FERON	Mathématiques
	GAUME	Physique
	PACHECO	Chimie biologique
	MERLIN	Chimie M.P.C.
	PISTOULET	Physique générale
	De CECCATTY	Zoologie
	PHILBERT	Physique nucléaire
	UZAN	Physique S.P.C.N.
	LEGAY	Zoologie expérimentale, S.P.C.N.
	BERSILLON	Physiologie végétale, S.P.C.N.
	PERES	Physiologie
	DAVID	Géologie
	LAFORGUE	Physique M.P.C.
	GAUTHIER J.	Chimie

Maîtres de Conférences adjoints

MM.	PIERRON	Chimie
	CHENEVOY	Géologie appliquée.

Chargés de Cours Complémentaires

MM.	PIERRON	Chimie
	STRIFFLING	Météorologie et Physique du Globe
	FIASSON	Zoologie - Agrégation
	MURET	Botanique - Agrégation
	MAZENOT	Géologie - Agrégation
	TRANCHAT	Physique-Chimie - Agrégation
Mme	FIASSON	Zoologie
M.	PENNANEAC'H	Mathématiques générales

Secrétaire

M. ROUX

A mon Maître, Monsieur M.PRETTRE

Professeur de Chimie Industrielle
à la Faculté des Sciences de Lyon

Directeur de l'Ecole Supérieure de Chimie Industrielle de Lyon

Directeur de l'Institut de Recherches sur la Catalyse

en témoignage
de ma profonde reconnaissance.

A mes Parents

A ma Femme

A ma Fille

A mes Frères

Digitized by the Internet Archive
in 2026

https://archive.org/details/IA41550014_0018

AVANT-PROPOS

Le travail que nous présentons a été effectué à l'Institut de Recherches sur la Catalyse, sous la direction de Monsieur le Professeur Prettre. Qu'il nous permette de lui exprimer notre profonde gratitude pour l'aide efficace qu'il nous a apportée au cours de nos recherches et la confiance qu'il nous a témoignée.

Nous tenons tout spécialement à remercier Monsieur le Professeur Teichner pour l'intérêt constant qu'il a porté à nos travaux, les judicieux conseils et les précieuses critiques dont il nous a fait bénéficier.

Cette étude a pû être menée à bien grâce à l'appui matériel de la Société d'Electrochimie d'Ugine. Que Monsieur Long, Directeur aux Services Centraux de Recherche et Monsieur Robin qui ont toujours témoigné d'une grande attention à notre égard, trouvent ici l'expression de notre vive reconnaissance.

Nous remercions Messieurs Prettre, Teichner et Merlin qui nous ont fait l'honneur de présider et de constituer notre jury de thèse.

Il nous est enfin très agréable de remercier les membres des services techniques de l'Institut de Recherches sur la Catalyse et plus particulièrement Monsieur Bottazzi, Chef de l'équipe technique, pour son étroite collaboration et sa précieuse contribution dans la réalisation de notre dispositif expérimental.

Que tous nos camarades de laboratoire trouvent ici l'expression de notre amicale sympathie.

INTRODUCTION

L'obtention d'un vide plus ou moins élevé, c'est-à-dire d'une pression plus ou moins réduite, a depuis longtemps dépassé le stade expérimental et aujourd'hui un très grand nombre d'opérations industrielles sont effectuées au-dessous de la pression atmosphérique. La pratique industrielle du vide connaît un essor considérable qu'illustre par exemple la variation de la capacité de production annuelle des Etats-Unis en métaux et alliages élaborés par fusion sous vide: entre 1948 et 1958 cette quantité est passée de 5 à 5.000 tonnes environ [(1), Franks p.59] .

La technique du vide est largement utilisée dans l'industrie chimique, notamment dans des opérations de distillation fractionnée, où elle permet d'éviter la décomposition de produits inégalement volatils, de séchage, de fumigation et d'imprégnation où elle se traduit par des gains de temps appréciables.

L'industrie métallurgique fait appel, surtout depuis une dizaine d'années, aux faibles pressions. Les opérations de fusion sous vide, de dégazage des métaux et alliages, de frittage de carbures sont passées du stade de laboratoire à la production en quantités importantes. La réalisation de souffleries à basse densité, destinées à simuler les vols à haute altitude et à des vitesses très élevées, constitue une des plus récentes applications industrielles du vide.

Dans toutes ces utilisations du vide, des pressions inférieures au millième de millimètre de mercure (abréviation : 10^{-3} mm Hg) sont généralement suffisantes. Les appareils et les méthodes utilisées diffèrent assez nettement de ceux qui sont nécessaires à l'obtention de pressions inférieures à 10^{-8} mm Hg ou vides très élevés, les seuls dont nous aborderons l'étude dans ce travail.

Les systèmes sous vide élevé (domaine 10^{-5} - 10^{-8} mm Hg) sont utilisés dans les expériences thermonucléaires mettant en jeu des gaz extrêmement purs et en électronique où les courants d'électrons et d'ions produits dans des enceintes évacuées ne doivent donner naissance à aucune ionisation parasite due à des gaz résiduels. C'est ainsi que les tubes d'émission et de réception radio, les ampoules à rayons X, les oscillographes cathodiques, les cyclotrons, les microscopes électroniques etc.. exigent des évacuations poussées.

L'obtention des vides très élevés est un problème qui n'a encore de solution satisfaisante que dans les laboratoires de recherches. Un nombre croissant d'auteurs tente de réaliser des appareillages capables de produire et de maintenir des pressions inférieures à 10^{-8} millimètre de mercure, car ce sont des outils scientifiques d'un très grand intérêt, notamment pour l'étude des phénomènes physico-chimiques de surface de substances dont les propriétés sont profondément modifiées par la présence de gaz adsorbés. En effet, sous une pression de 10^{-6} mm Hg, un gaz adsorbable forme une couche unimoléculaire complète sur une surface propre en une seconde environ[(2)]. Aussi, sous cette pression, l'étude des propriétés de la surface propre devra être réalisée en une fraction de seconde. Si on se propose par exemple de suivre la cinétique d'adsorption d'un réactif gazeux (adsorbat) à la surface d'un solide (adsorbant), ce laps de temps est insuffisant en comparaison de celui qu'exige l'introduction de l'adsorbat. De même, sous une pression de 10^{-6} mm Hg, les premières étapes d'une réaction catalytique risquent de passer inaperçues alors qu'elles constituent un renseignement précieux pour la détermination du mécanisme fondamental de la réaction globale.

De nombreux phénomènes, considérés auparavant comme instantanés donc non activés, se manifestent avec des vitesses mesurables lorsqu'il est possible de les étudier sous des pressions très faibles. En effet, sous une pression de 10^{-8} mm Hg, le temps de formation d'une couche adsorbée sur une surface propre est déjà de 100 secondes et de quelques heures sous 10^{-10} mm Hg.

Mentionnons également que de nombreux chercheurs, depuis Langmuir, ont remarqué que les caractéristiques d'adsorption d'une surface peuvent être radicalement changées par l'adsorption préalable d'une faible fraction d'une couche d'impuretés. Ainsi Sachter et Dorgelo[3] étudièrent, à l'aide de l'émission photoélectrique et de la conductivité électrique, l'adsorption d'hydrogène sur du nickel, afin de trouver une explication aux résultats apparemment contradictoires obtenus par Suhrmann et ses collaborateurs[4,5,6,7,8] et par Mignolet[9]. Sachter et Dorgelo s'aperçurent que sur les films de nickel déposés sous un vide d'environ 10^{-5} mm Hg, dont les surfaces ne peuvent être considérées comme propres, une chimisorption d'hydrogène à température ambiante produit une augmentation de la conductivité et un potentiel de surface positif (dus à la présence d'individualités superficielles chargées positivement, telles que les ions H^+), en accord avec les résultats de Suhrmann, alors que sur les films obtenus sous vide élevé, (pression voisine de 10^{-8} mm Hg) les effets dus à l'hydrogène adsorbé sont exactement l'inverse des précédents, comme l'avait trouvé Mignolet.

Récemment Guillaud[10], pour suivre l'émission photoélectrique d'échantillons métalliques sous l'influence de contraintes mécaniques, a réalisé un vide de l'ordre de 10^{-8} mm Hg afin d'éliminer toute variation d'émission due au dépôt d'impuretés gazeuses à la surface des échantillons.

Afin d'entreprendre une étude de la cinétique d'adsorption de quelques gaz sur des alliages métalliques qui ne soient pas contaminés superficiellement, nous avons été amenés à réaliser un appareillage dans lequel il est possible d'atteindre des pressions de l'ordre de 10^{-10} mm Hg. Nous envisagerons dans un premier chapitre les techniques d'obtention et de mesure du vide très élevé, nous décrirons ensuite les différentes parties de l'appareillage que nous avons réalisé dans ce but et nous exposerons enfin les conditions d'utilisation et les performances de ce dernier.

CHAPITRE I

OBTENTION ET MESURE DES VIDES TRES ELEVES

Dans la technologie des vides très élevés deux problèmes assez différents se posent simultanément, l'obtention du vide et sa mesure.

L'un et l'autre ont reçu depuis quelques années des solutions satisfaisantes que nous nous proposons d'examiner séparément.

Obtention du vide très élevé.

Des pressions de l'ordre de 10^{-9} mm Hg avaient probablement été atteintes, bien avant 1950, par emploi de getter et de décharge ionisante. Elles peuvent être établies par exemple dans des tubes électroniques qui ont fonctionné pendant plusieurs milliers d'heures. Cependant, l'obtention de telles pressions était impossible jusqu'alors sans l'emploi de getter, de même que leur maintien dans des enceintes non scellées.

Pour obtenir des pressions inférieures à 10^{-7} mm Hg, il est nécessaire de chauffer à haute température (400-500°C) pendant plusieurs heures l'enceinte à vide très élevé afin d'éliminer la plus grande partie des gaz ou vapeurs adsorbés sur ses parois. Le volume ainsi dégazé doit être ensuite isolé du groupe de pompage (enceinte à vide primaire) comprenant notamment une pompe à diffusion de vapeurs d'huile ou de mercure qui devient une source de contamination. Sous d'aussi faibles pressions, le dispositif d'arrêt ne peut être un robinet graissé qui est indésirable du fait de la tension de vapeur non négligeable du lubréfiant (10^{-7} mm Hg est la tension de vapeur des meilleures huiles et graisses utilisées

dans la technique du vide) et parce que la quantité de gaz occlus non condensables libérés lors de la rotation d'un robinet peut être bien supérieure à la quantité de gaz résiduels du système.

Comme il n'est pas possible de chauffer un robinet graissé à une température suffisante pour éliminer les gaz que contiennent la graisse et les parois, il faut faire appel à des dispositifs d'arrêt qui soient dégazables. Alpert[2] mit au point le premier, en 1951, un appareillage capable d'atteindre et de maintenir en statique, de façon reproductible, des pressions allant jusqu'à 10^{-10} mm Hg. Une fois terminé le chauffage à 450°C de l'enceinte à vide très élevé en vue d'un dégazage, le vide limite de la pompe à diffusion d'huile est d'abord réalisé(environ 10^{-7} mm Hg). Alpert isole ensuite l'enceinte à vide primaire de la rampe sous faible pression à l'aide d'une vanne métallique de son invention (figure 1). L'enceinte ainsi close contient une jauge à ionisation d'un type nouveau[11]. Cette triode, dont les parties métalliques ont été dégazées au préalable vers 1.200°C par bombardement électronique, avant la fermeture de la vanne, est mise en fonctionnement et sert à parfaire le vide limite donné par la pompe à diffusion.

Nous rappellerons ultérieurement le principe du fonctionnement d'une jauge à ionisation, mais précisons dès maintenant que cet instrument de mesure des pressions constitue aussi une véritable pompe. Son action pompante est de deux sortes:

- de nature purement chimique (par décomposition de molécules en atomes ou radicaux actifs chimiquement et fixés par les parois en verre de la jauge) lorsqu'un filament de la jauge est porté à l'incandescence, qu'il y ait ou non un potentiel électrique appliqué aux autres électrodes.

- de nature à la fois chimique et électrique lorsque le collecteur d'ions est à un potentiel négatif par rapport au filament. Dans ce cas, les ions positifs formés sont captés par le collecteur ionique et surtout par les parois en verre de la jauge, parois qui sont chargées négativement du fait de leur bombardement par des électrons en provenance du filament.

L'action pompante de la jauge Bayard-Alpert est mise à profit pour faire décroître la pression de 10^{-7} à quelques 10^{-10} mm Hg dans l'enceinte à vide très élevé.

La vanne conçue par Alpert (figure 1) isole efficacement l'enceinte sous la pression de 10^{-7} mm Hg de celle sous 10^{-10} mm Hg. Son étanchéité par rapport à la pression atmosphérique extérieure est satisfaisante.

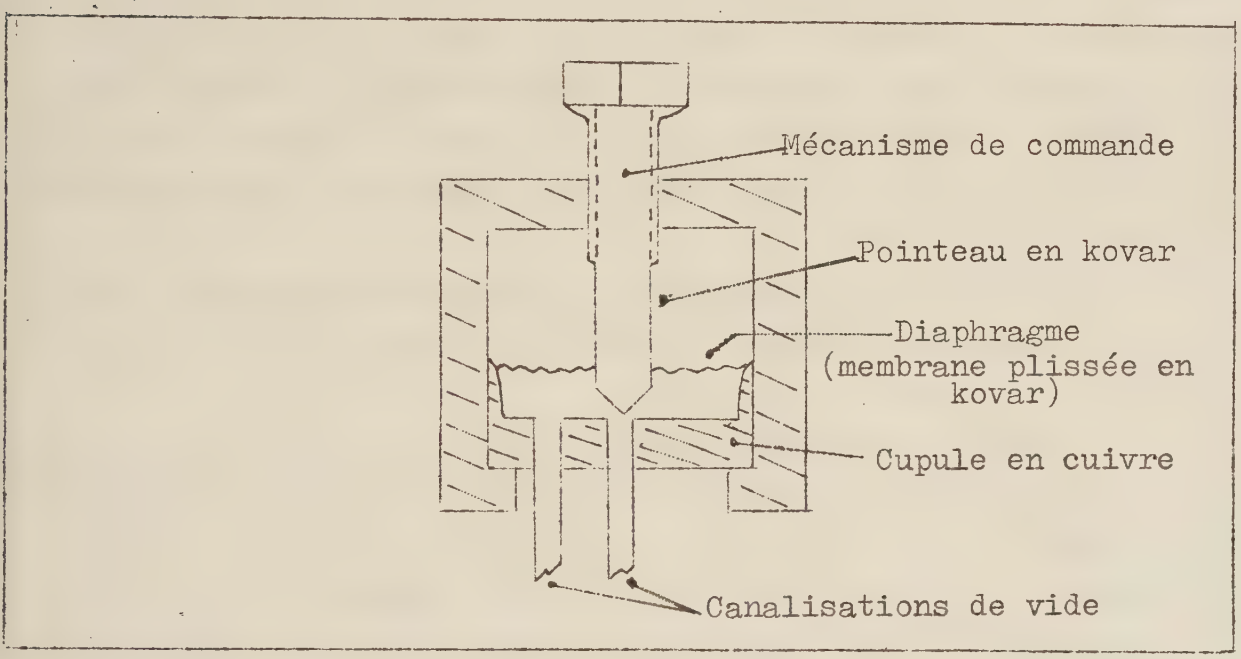


Figure 1 - Schéma de principe d'une vanne Alpert pour vide très élevé.

Elle est constituée par une cupule peu profonde en cuivre dans laquelle sont brasées deux canalisations de vide . Un pointeau en kovar (alliage fer, nickel, cobalt) actionné manuellement, solidaire d'un diaphragme lui-même en kovar, vient obturer une des deux canalisations de vide.

Il est important de remarquer que même lorsque le pointeau est en position fermée, l'obturation n'est pas totale . La

conductance de fuite d'une vanne Alpert, qui exprime son étanchéité, varie d'un appareil à l'autre et dépend également de la pression mécanique qui s'exerce sur le pointeau. Les valeurs données par Alpert vont de moins de 1×10^{-11} l/sec. à 5×10^{-9} l/sec. pour un couple de fermeture de 3-4 kg x m. Des fuites aussi faibles sont sans importance si la pompe à diffusion fonctionne, mais deviennent indésirables si une pression d'une atmosphère par exemple s'exerce dans l'enceinte à vide primaire d'un côté de l'obturateur. Elles sont attribuées par Bills et Allen[12] à l'existence de rugosités ou sillons microscopiques sur la surface d'étanchéité entre l'extrêmité conique du pointeau en kovar et son siège en cuivre. Ces auteurs prétendent avoir supprimé cet inconvénient en réalisant un joint à l'aide d'un anneau de métal mou (argent) comprimé entre le pointeau et son siège, l'un et l'autre en métal très peu malléable (monel).

La conductance de fuite de la vanne Bills-Allen, déterminée par une méthode différente de celle utilisée par Alpert, est d'environ 10^{-14} litre par seconde.

Alpert se sert exclusivement de pompes à diffusion d'huile pour atteindre des pressions de l'ordre de 10^{-7} mm Hg, estimant que leur principal avantage sur les pompes à diffusion de mercure réside dans la suppression des pièges à gaz liquéfié. Tel n'est pas l'avis de Redhead[13] qui préfère utiliser une pompe à diffusion de mercure à 3 étages et un piège à azote liquide pour atteindre, après dégazage de l'enceinte à vide très élevé pendant 16 heures à 450°C et des éléments métalliques de la jauge à ionisation à température encore plus élevée, une pression finale de l'ordre de 10^{-10} mm Hg. Redhead justifie son choix d'une pompe à diffusion de mercure dans la possibilité de fonctionnement de ces pompes avec des pressions primaires relativement élevées, ce qui permet d'arrêter durant de longues périodes la pompe primaire. En utilisant un gaz liquéfié dont le niveau doit rester constant, les pompes à diffusion de mercure ont des vides limites théoriquement inférieurs à ceux des pompes à diffusion d'huile.

Les appareillages d'Alpert et de Redhead permettent de passer de la pression atmosphérique à la pression d'environ 10^{-10} mm Hg. Leur schéma de principe est conforme à la figure 2.

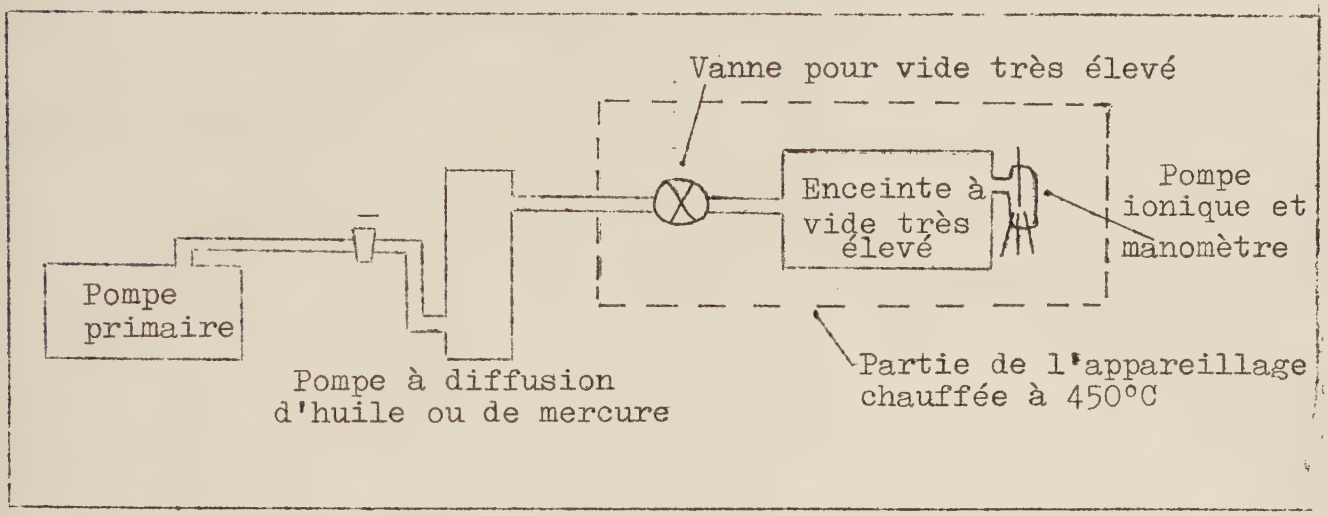


Figure 2 - Schéma de principe d'un appareillage pour vide très élevé.

Redhead parvient même à obtenir des pressions de cet ordre de grandeur en supprimant toute pompe à diffusion, à l'aide d'une pompe mécanique seulement et d'une pompe à piégeage ionique. Cet instrument dit "pompe à évaporateur de titane" (13) est essentiellement une jauge à ionisation du type Bayard-Alpert dont le collecteur est remplacé par un filament évaporateur de titane (figure 3).

Après création d'un vide de quelques 10^{-3} mm Hg et dégazage d'une partie de l'appareillage, la vanne pour vide très élevé est fermée. Du titane est ensuite évaporé par chauffage électrique, opération qui est suivie du nettoyage de la grille et de l'évaporateur par bombardement électronique en provenance du filament. Une faible quantité de titane est de nouveau évaporée. Les atomes de titane provenant de cette sublimation fixent chimiquement des molécules de gaz sur leur parcours avant d'atteindre les parois de la jauge sur lesquelles ils se déposent, emprisonnant également

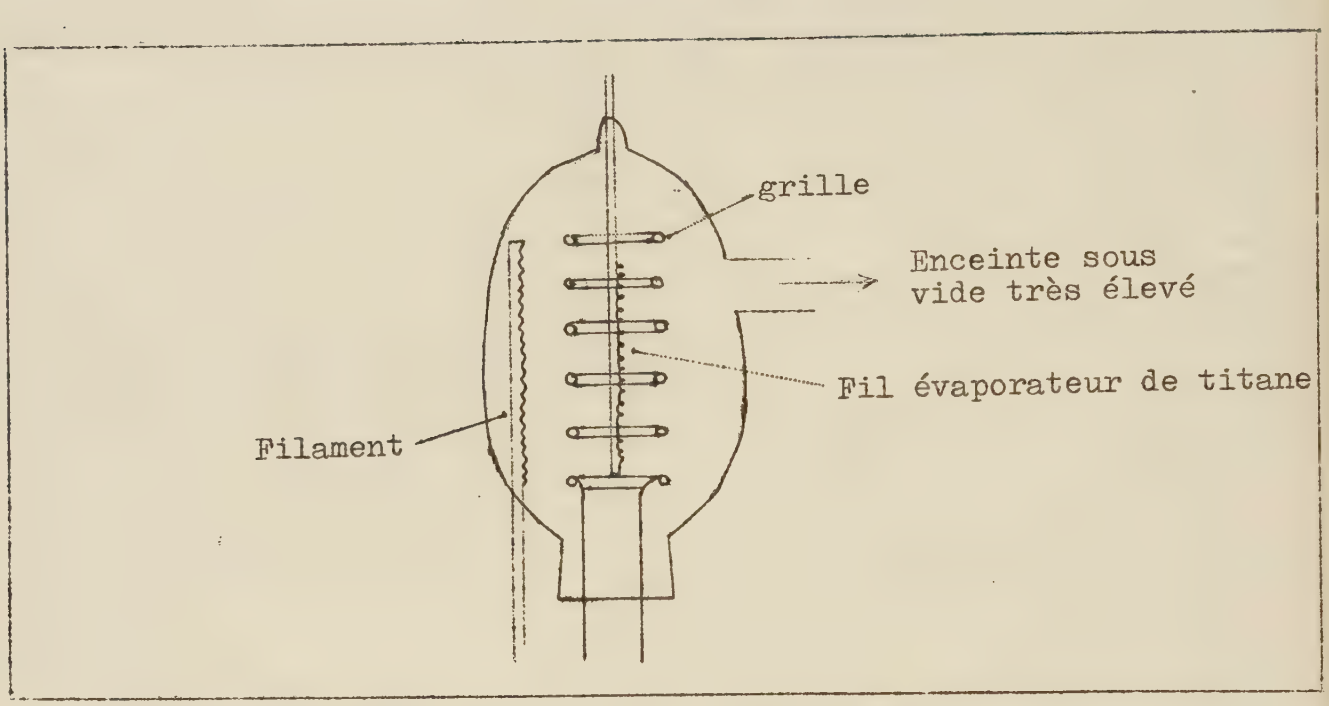


Figure 3 - Schéma d'une pompe à évaporateur de titane.

atomes et molécules d'air qui s'y trouvent. Lorsque cette mince couche de titane est saturée de gaz, une couche fraîche est à nouveau déposée. Cette action pompante sur les gaz actifs de l'air, jointe à une ionisation des molécules de gaz rares par les électrons du filament, fait tomber la pression de 10^{-3} mm Hg jusqu'à 10^{-10} mm Hg en peu de temps. Redhead interpose un piège à feuilles de cuivre (14) entre la rampe à vide très élevé et la pompe mécanique pour protéger le système des vapeurs d'huile provenant de cette pompe.

Une des principales difficultés d'utilisation de ces pompes à piégeage ionique réside dans leur nettoyage une fois qu'elles ont été en communication avec la pression atmosphérique. Parfois appelées pompes à "getter", elles ont une vitesse de pompage très élevée (quelques dizaines de litres par seconde) qui en fait des instruments d'une grande utilité pour la technique du vide très poussé (15).

Mentionnons enfin qu'en scellant la rampe à vide très

élevé sous une pression de 10^{-8} mm Hg et en immergeant dans l'hélium liquide un doigt en pyrex en communication avec cette rampe, Redhead a pû faire passer la pression de 10^{-10} à 10^{-12} mm Hg. Ces pressions sont, à notre connaissance, les plus faibles jamais atteintes ou en tout cas mesurées. Redhead suppose que ce vide limite est déterminé par l'égalité des vitesses de diffusion des gaz de l'atmosphère (surtout de l'hélium) au travers des parois en pyrex du système, et de leur élimination par les pompes. Il est possible que les recherches en vue d'atteindre un vide encore plus élevé s'orientent dans un sens visant à réduire la pression extérieure des gaz diffusants, c'est-à-dire à enfermer l'appareil sous très faible pression dans une enceinte où règne un vide moyen, solution qui ne manque pas de difficultés pratiques et qui est cependant déjà appliquée à la fabrication de certains tubes électroniques pour très hautes fréquences [(1), Robinson p.25].

Mesure du vide très élevé

L'instrument conventionnel de mesure des basses pressions est la jauge à ionisation (16) (figure 4).

Dans cette triode, un flot d'électrons émis par un filament (potentiel zéro) est accéléré vers la grille (potentiel positif) et les ions positifs formés par ionisation dans les espaces filament-grille et grille-collecteur d'ions sont captés par le collecteur ionique (potentiel négatif) et les parois de la jauge (chargées négativement par des électrons en provenance du filament). Les ions atteignant le collecteur se déchargent et le courant ionique i_p est éventuellement amplifié, puis mesuré ou enregistré.

La jauge est étalonnée en établissant une pression p d'azote, d'environ 10^{-4} mm Hg, mesurée avec une jauge de Mac Leod et en suivant le courant ionique i_p pour une ou plusieurs valeurs du courant électronique i_e. Les valeurs de i_p et i_e ainsi obtenues

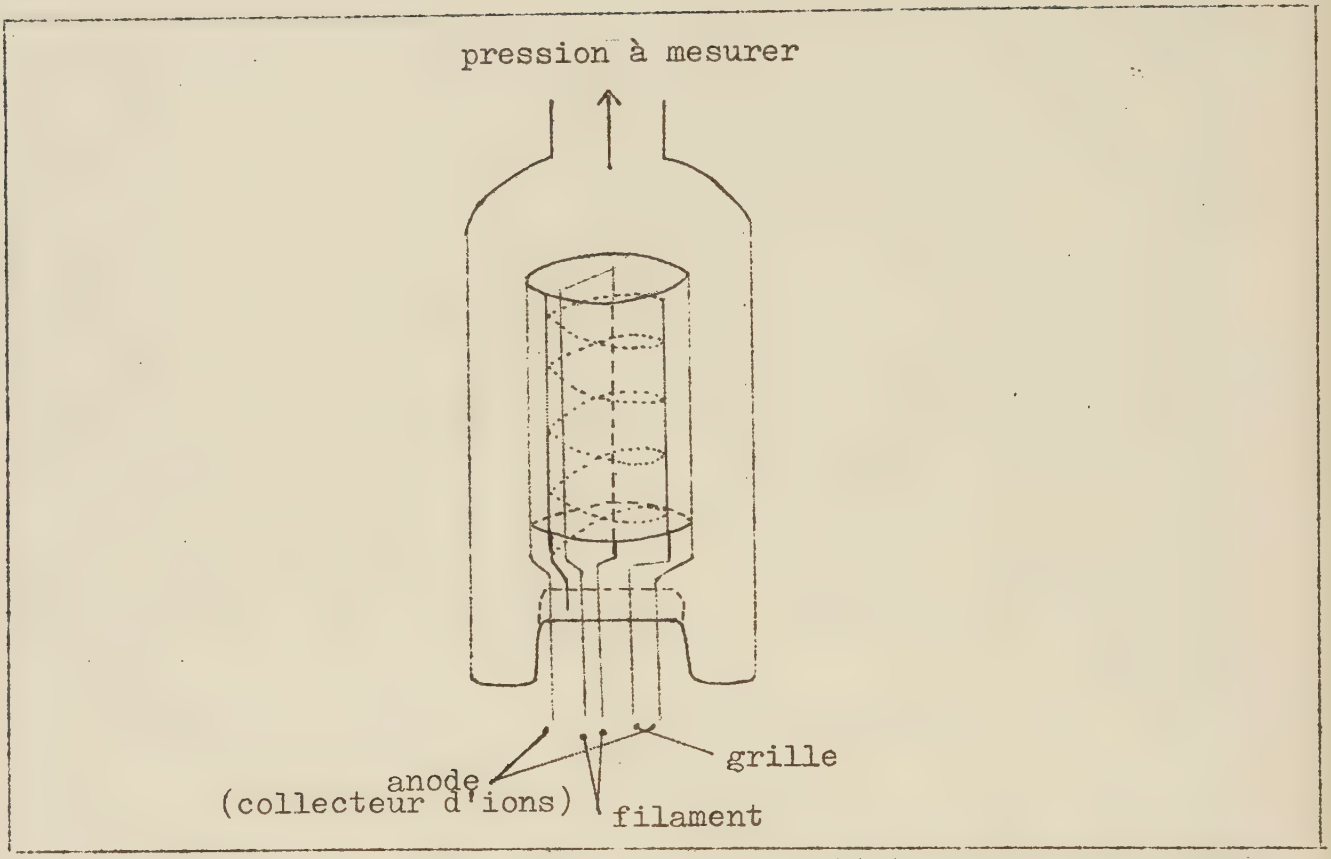


Figure 4 - Jauge à ionisation conventionnelle.

montrent que i_p est directement proportionnel à i_e et à la pression p (exprimée en mm Hg)

$$i_p = i_e \cdot g \cdot p$$

g est la constante de la jauge, elle a une valeur bien déterminée pour chaque gaz (constante de sensibilité).

On choisit par exemple pour i_e une valeur numérique telle que le produit $g\, i_e$ soit égal à 10^{-1} ampère pour l'air. Un courant ionique i_p de 1 μ A correspond alors à une pression p de 10^{-5} mm Hg. Si la plus faible pression mesurable se ramenait à un problème de mesure d'un courant ionique minimum, il serait possible d'apprécier des pressions inférieures à 10^{-16} mm Hg à l'aide d'une jauge à ionisation.

Cependant Richardson et Chaklin[17] démontrèrent dès 1926 que la mesure des faibles courants ioniques d'une jauge à ionisation conventionnelle est perturbée par l'existence d'un courant résiduel indépendant de la pression recueilli par le collecteur d'ions. Ce courant est dû à des rayons X mous créés par bombardement électronique de la grille, qui libèrent des électrons photoélectriques sur le collecteur d'ions. Ce courant électronique est de même signe que celui dû aux ions positifs captés par le collecteur. Nottingham [18] mit en évidence ce phénomène et conclut que la pression mesurée dans une jauge à ionisation conventionnelle doit excéder 10^{-8} mm Hg pour que le courant ionique soit notablement supérieur au courant résiduel indépendant de la pression.

La mise au point en 1950 par Bayard et Alpert [11] d'une jauge à ionisation d'un type nouveau permit d'abaisser à 10^{-10} mm Hg la limite inférieure de la pression mesurable.

Ce manomètre est schématisé sur la figure 5; l'aire de la surface du collecteur d'ions exposée au rayonnement X (provenant de la grille) a été considérablement réduite, le cylindre collecteur d'ions des jauges conventionnelles ayant été remplacé par un fil en tungstène de faible diamètre. La nouvelle jauge comprend les trois électrodes habituelles: filament, grille et collecteur d'ions, mais leur disposition diffère de celle des jauges conventionnelles. Les filaments sont extérieurs à la grille cylindrique et le fil fin collecteur d'ions est suspendu à l'intérieur de cette grille.

Le recul de la limite inférieure de la pression mesurable avec la jauge Bayard-Alpert est illustré par la comparaison des courbes de l'intensité i_p du courant ionique en fonction de la tension grille U_g pour une jauge à ionisation conventionnelle et une jauge Bayard-Alpert (figure 6).

Dans le cas d'une jauge conventionnelle, la caractéristique $I_p = f(U_g)$ ne présente plus la forme des courbes de probabilité d'ionisation d'un gaz par choc électronique, pour des pressions inférieures à 10^{-8} mm Hg. Cette limite est devenue environ

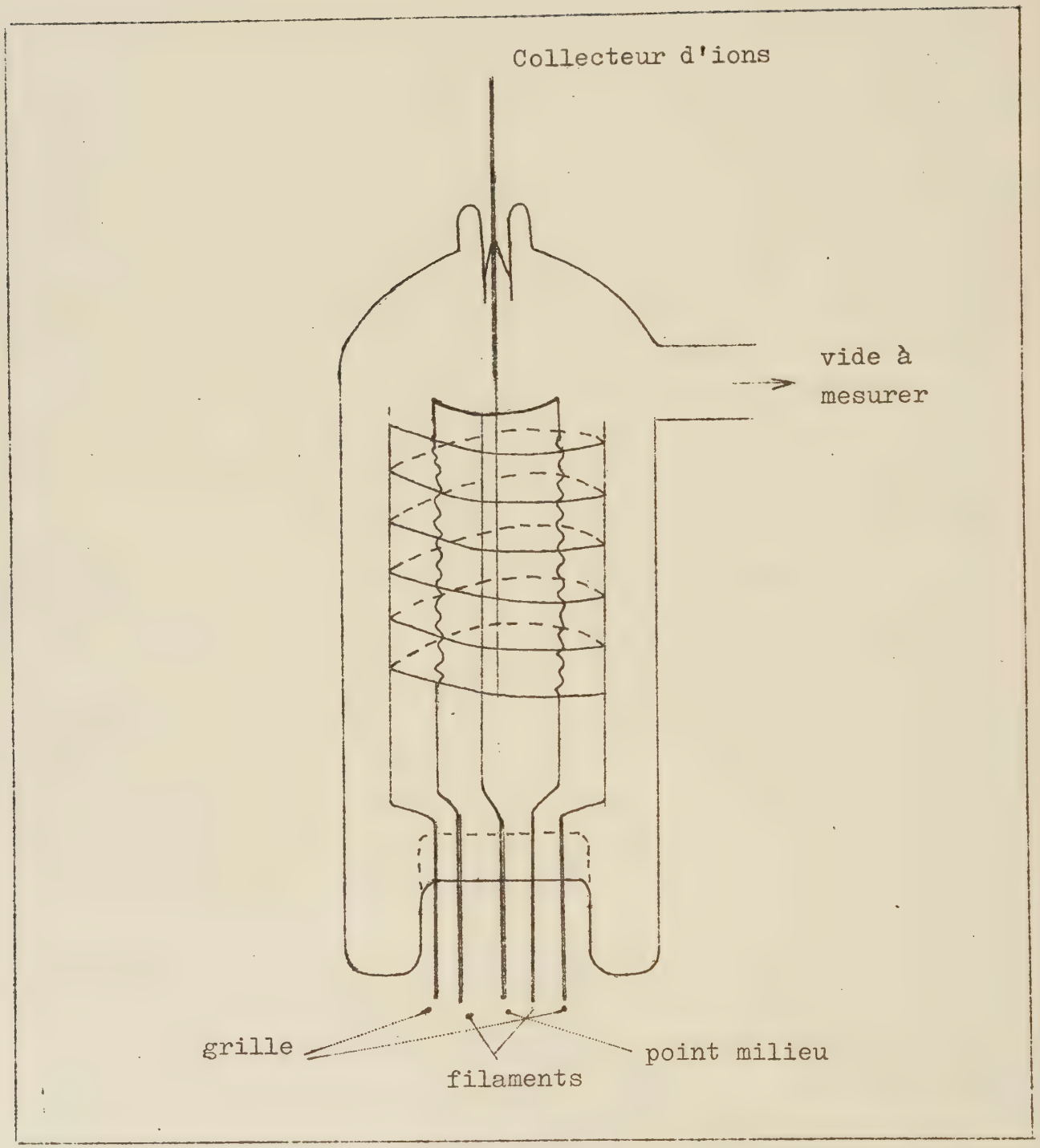


Figure 5 - Jauge à ionisation, type Bayard-Alpert

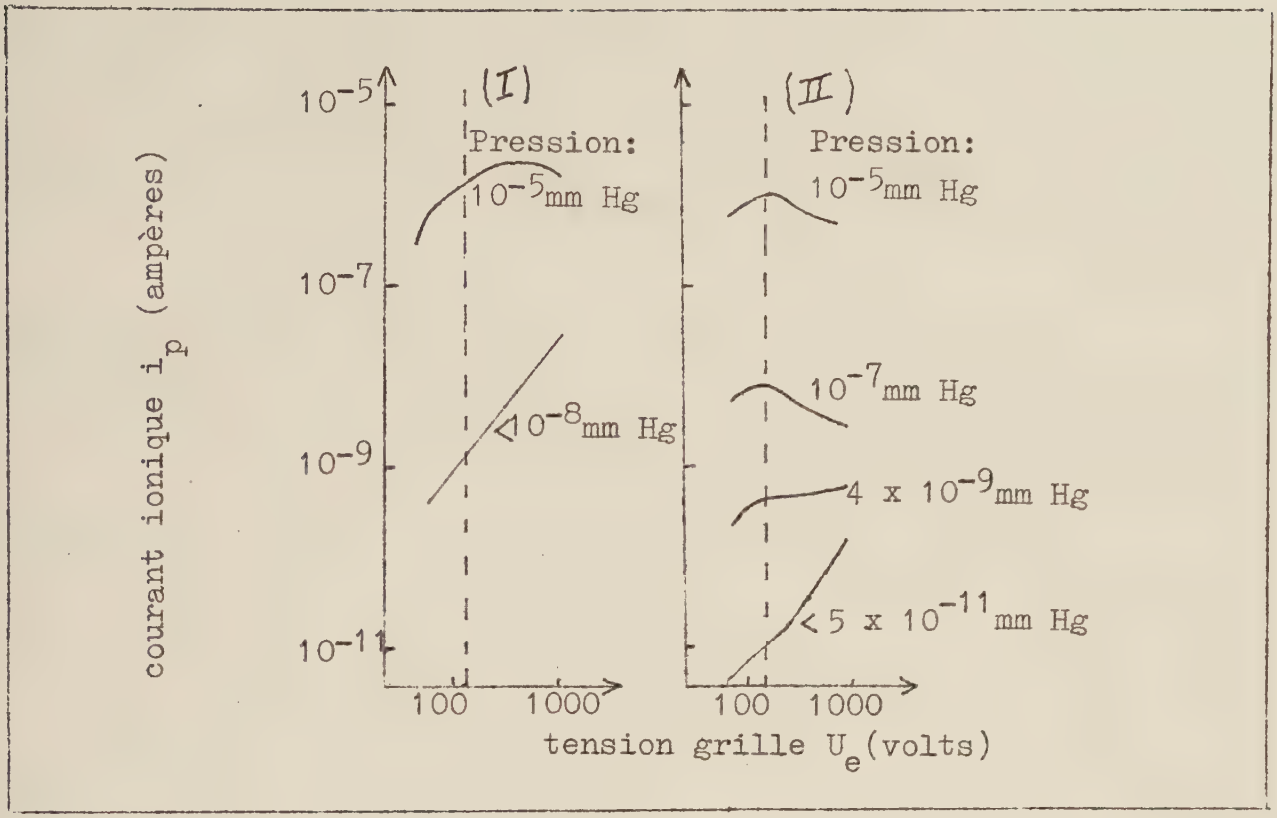


Figure 6 - Caractéristiques $I_p = f(U_e)$ d'une jauge à ionisation conventionnelle (I) et d'une jauge à ionisation Bayard-Alpert (II)

5×10^{-11} mm Hg avec une jauge du type Bayard-Alpert.

Remarquons que Morgoulis [19,20] dans sa théorie de la jauge à ionisation a proposé des équations traduisant l'allure des courbes de probabilité d'ionisation effective dans un large intervalle d'énergie des électrons (c'est-à-dire pour des tensions grille comprises entre 0 et 500 volts par exemple). Cependant, la comparaison de la courbe représentative des variations de la fonction $g = f(U_e)$ (qui varie dans le même sens que $i_p = f(U_e)$ pour une pression p et un courant de grille i_e donnés) calculée d'après la théorie de Morgoulis pour une jauge à ionisation à électrodes cylindriques (cas de la jauge Bayard-Alpert en particulier), avec la courbe expérimentale pour le même manomètre a permis à

Kkavkine [21] de découvrir des divergences considérables entre ces courbes dans le domaine des hautes tensions anodiques. Aussi cet auteur a-t'il proposé de nouvelles équations approchées donnant la probabilité d'ionisation dans un gaz, qui sont un bon accord avec les résultats expérimentaux, quelle que soit la valeur de la tension de grille.

Quoiqu'environ 1000 fois plus faible que dans une jauge à ionisation conventionnelle le rayonnement X qui existe dans un manomètre Bayard-Alpert constitue un obstacle, du fait même de son existence, à la mesure des pressions inférieures à 10^{-10} mm Hg.

Redhead a obtenu récemment dans des enceintes scellées des pressions inférieures à 10^{-10}mm Hg qu'il a mesurées au moyen de deux nouveaux manomètres pour vides très élevés. Il a dénommé ces instruments de son invention "jauge magnetron inversée"[22] et "jauge magnetron"[23]. Ces jauges à ionisation à cathode froide, dans lesquelles Redhead s'est attaché à réduire au minimum les phénomènes d'émission de champ, sont le siège de courants ioniques qui paraissent varier linéairement avec la pression jusqu'à 10^{-12}mm Hg.

Dans la "jauge magnetron inversée" schématisée sur la figure 7, le collecteur d'ions (cathode) est un cylindre dont les bases sont percées de deux trous qui permettent le passage de l'anode et de deux tubes écran. Une cathode auxiliaire de forme parallélépipédique entoure le collecteur d'ions et sert d'écran électrostatique. Deux écrans tubulaires soudés à la cathode auxiliaire dépassent à l'intérieur du cylindre cathodique qu'ils protègent des champs élevés. Ils sont traversés par l'anode et fournissent le courant initial d'émission de champ qui crée la décharge. Le courant qui va sur la cathode auxiliaire ne traverse pas l'amplificateur de courant ionique. Il est surtout dû à une émission de champ.

Cette jauge entièrement métallique est dégazable. Redhead l'a étalonnée par rapport à une jauge Bayard-Alpert dans le domaine 10^{-3} - 10^{-10} mm Hg. Pour des pressions comprises entre 10^{-10} et 10^{-12} mm Hg, obtenues par piégeage d'une fraction de l'enceinte évacuée à l'hélium liquide, Redhead suppose que le cou-

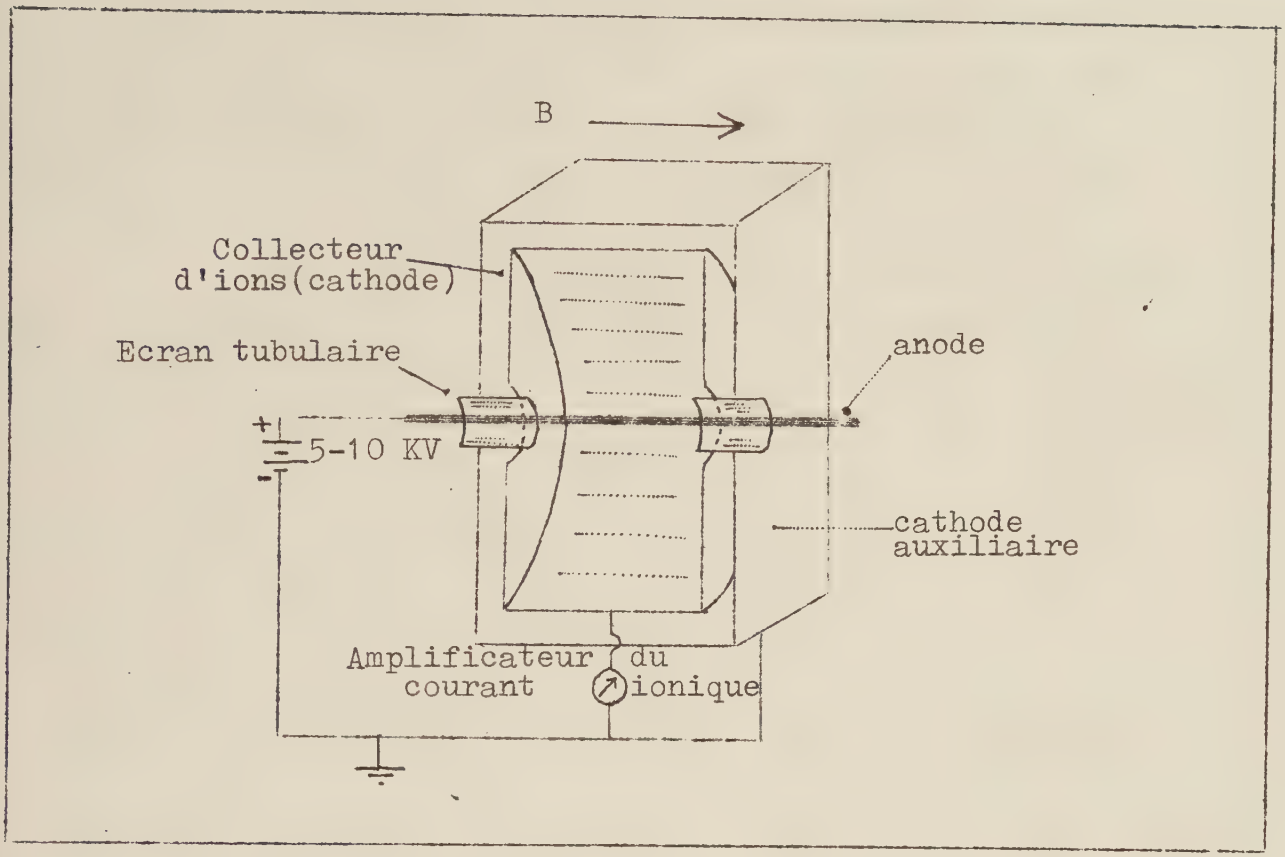


Figure 7 - Schéma de la coupe d'une jauge "magnetron inversée"

rant ionique recueilli par la cathode de la jauge continue à varier linéairement avec la pression,alors que la jauge Bayard-Alpert accuse la diminution de la pression mais s'avère incapable de la mesurer (figure 8). Redhead[22] fit d'autres essais tendant à montrer la réalité des très faibles pressions qu'il avait obtenues.

La jauge "magnetron" non inversée est également une jauge à ionisation à cathode froide mais dans laquelle la cathode auxiliaire, qui sert encore d'écran électrostatique, est interposée entre l'anode et la cathode. Cette jauge permet aussi la mesure des pressions allant jusqu'à 10^{-12} mm Hg.

Il est possible, selon Redhead, que ces deux nouvelles

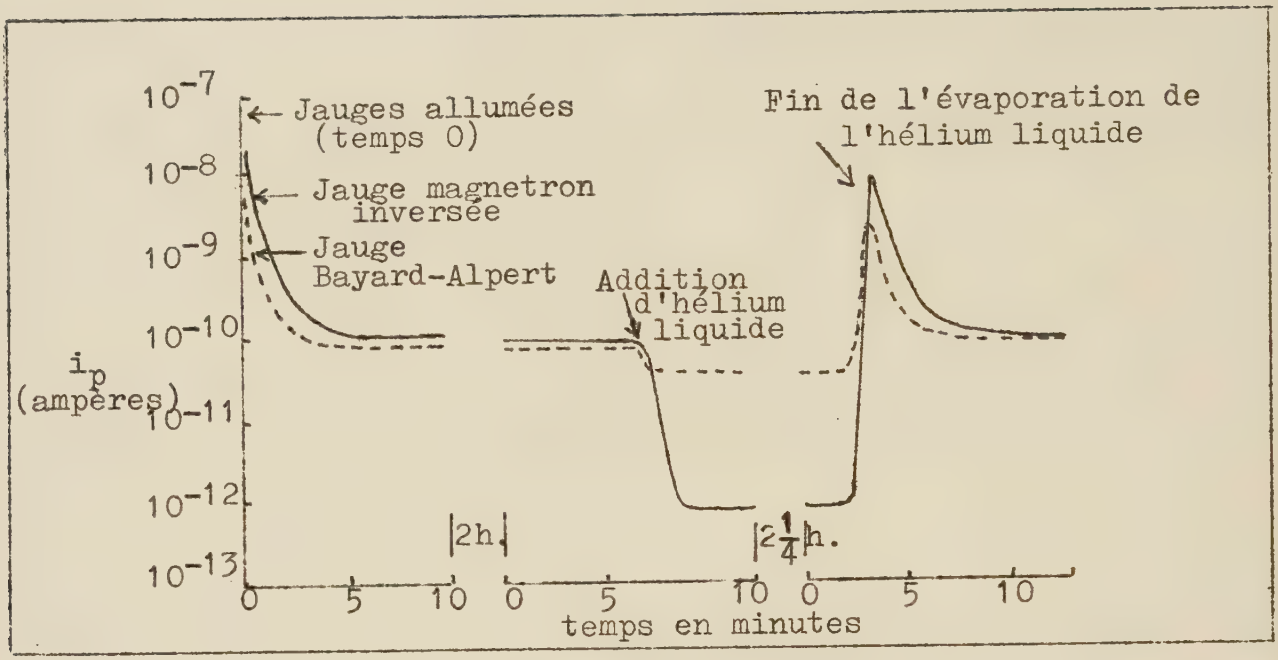


Figure 8 - Influence sur un vide très élevé du piégeage à l'hélium liquide

jauges "magnetron inversée" et "magnetron" soient le siège d'un courant résiduel indépendant de la pression produit par des fuites ohmiques, analogue au courant dû aux rayons X des jauges Bayard-Alpert, qui fixerait à 10^{-12} mm Hg la limite inférieure de la pression mesurable.

Détection des fuites dans les enceintes sous vide très élevé.

Il n'est guère possible d'aborder, même sommairement, la technique des vides très élevés sans mentionner les difficultés que l'on rencontre dans la recherche des fuites existant dans des appareillages sous très faible pression, aussi bien dans les parois en verre que dans les parties métalliques.

Alpert[2] préconise l'application sur la fuite d'un coton imbibé d'acétone ou d'un autre solvant organique. Si la fuite est suffisamment petite, ce traitement peut se traduire soit par son

obturation et une diminution du courant ionique fourni par la jauge à ionisation, soit par l'entrée d'un mélange gazeux d'air et de vapeur organique dans l'appareillage et une variation du courant ionique de la jauge due à la sensibilité différente de la jauge pour l'air et le nouveau mélange gazeux.

Une autre méthode fort utilisée est la détection des fuites à l'hélium, à l'aide d'un spectromètre de masses. L'hélium est choisi en raison de sa masse atomique très peu élevée et de sa rareté dans l'air. Le principe d'une détection de fuites à l'hélium est de substituer à l'air passant normalement au travers du trou, un mélange air-hélium très riche en ce gaz rare. Une partie du mélange ayant pénétré dans l'enceinte à vide très élevé est envoyée dans le détecteur où se produit une ionisation des molécules du mélange. Un champ magnétique dévie plus ou moins les particules électrisées selon leur masse et le faisceau d'ions hélium ainsi séparés des ions d'oxygène et d'azote formés en même temps qu'eux, tombe sur une cible reliée à un amplificateur. La présence d'hélium se traduit finalement par un accident sur une courbe d'allure régulière.

Les fuites minima décelables avec les meilleurs détecteurs fabriqués actuellement sont de l'ordre de 10^{-10} atm . cm^3/sec, ce qui correspond à des microfuites ayant des dimensions inférieures au centième de micron. Le coût très élevé de ces instruments en limite la diffusion.

Citons enfin une technique de détection des microfuites consistant à suivre dans une enceinte isolée l'augmentation de la pression. Des mesures de la pression sont faites à intervalles de temps réguliers au moyen d'une jauge à ionisation et la vitesse d'accroissement de la pression traduit l'étanchéité du système. Cette méthode peut donner des résultats intéressants si l'on se place, durant les mesures, dans des conditions telles que la jauge se comporte comme un manomètre et non comme une pompe ionique. Elle permet, selon Alpert[2], de déceler des fuites de dimensions très inférieures à celles qui sont détectables par la méthode à

l'hélium.

Pour Hobson et Redhead [22], une vitesse d'augmentation de la pression de 10^{-11} mm Hg par minute dans un appareillage convenablement dégazé doit être attribuée à une diffusion de l'hélium atmosphérique au travers des parois en pyrex de l'enceinte.

La mise au point par Alpert, en 1951, d'une nouvelle technologie d'obtention et de mesure du vide très élevé a suscité un intérêt certain auprès d'un grand nombre de chercheurs. Cet intérêt qui ne cesse de croître, est justifié par les nombreuses applications du vide très poussé à des problèmes industriels et fondamentaux.

On dispose actuellement au laboratoire de plusieurs types d'appareillages capables de produire, de mesurer et de maintenir de façon satisfaisante des pressions de l'ordre de 10^{-10} millimètre de mercure, parfois même inférieures.

La mesure de très faibles pressions, c'est-à-dire finalement de courants électriques ayant des intensités aussi faibles que 10^{-13} ampère est inévitablement entachée d'une certaine erreur.

Toutefois si les pompes nécessaires à l'obtention d'aussi faibles pressions paraissent au point, il semble que des progrès certains puissent être accomplis dans la réalisation, voire le principe, des vannes à vide très élevé.

CHAPITRE II

DISPOSITIF EXPERIMENTAL POUR LA REALISATION DU VIDE TRES ELEVE

Nous avons construit un appareillage capable d'isoler de la pression atmosphérique (ou de pressions inférieures) des enceintes sous une pression de l'ordre de 10^{-10} mm Hg et de maintenir celle-ci pendant plusieurs jours.

Au cours de la description des différentes parties de ce système, nous insisterons sur les raisons qui ont guidé nos recherches en vue d'améliorer ou de modifier tel ou tel organe d'un appareillage connu. En formulant ces observations, nous ne perdons pas de vue le mérite qui incombe à ceux qui ont imaginé les premiers ces nouveaux appareils, sachant pertinemment la part qui leur revient dans les nouvelles possibilités d'atteindre des très faibles pressions.

Afin de rendre plus claire la présentation de ce travail nous décrirons séparément:

1°) le système de production et de mesure de pressions d'environ 10^{-7} mm Hg (vide primaire).

2°) la vanne pour vide très élevé (vide secondaire).

3°) l'enceinte à vide secondaire.

4°) les conditions d'utilisation et les performances de l'appareillage

Réalisation de pressions de 10^{-7} mm Hg

L'ensemble de l'appareillage est schématisé sur la figure 9.

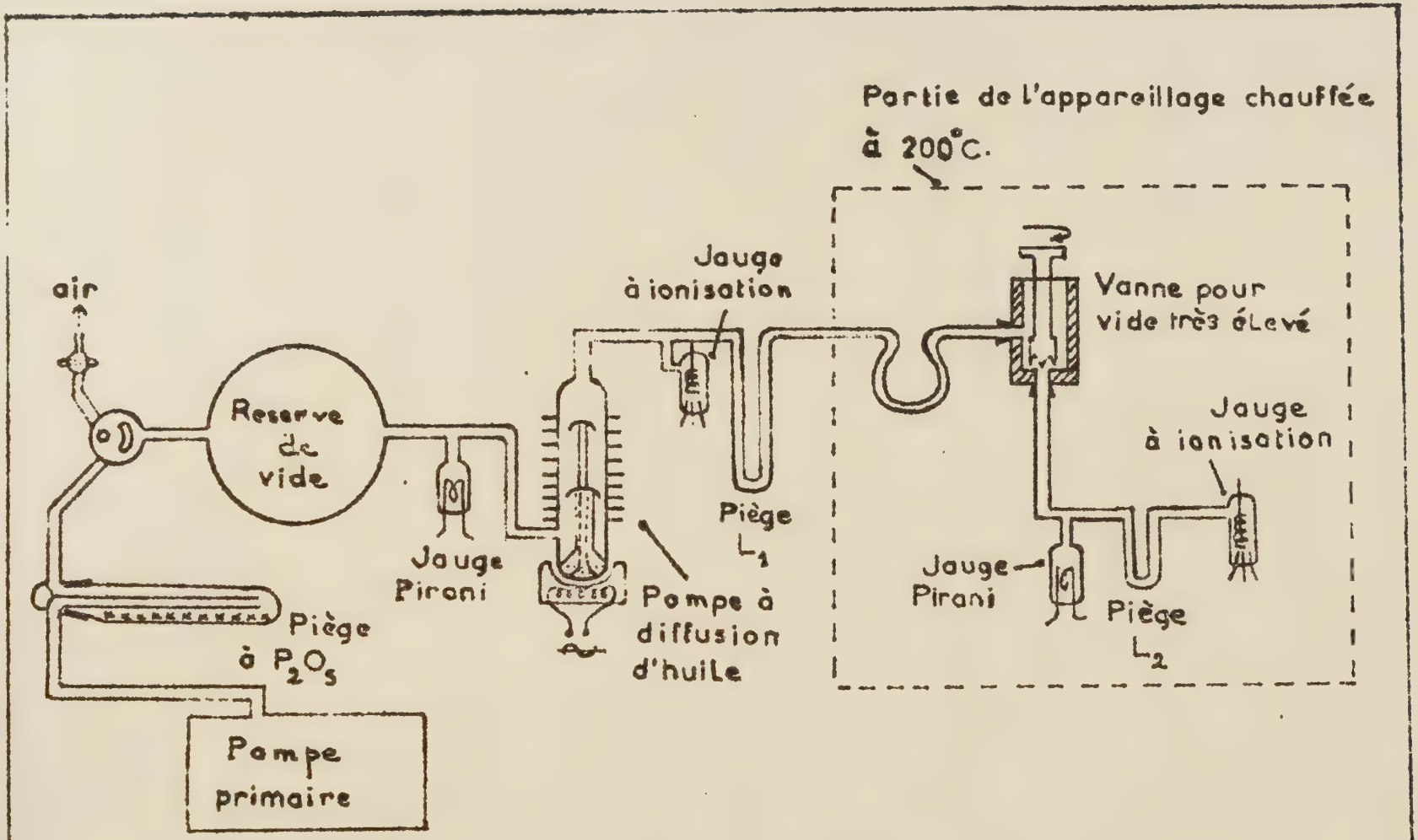


FIGURE 9 DISPOSITIF POUR REALISER DES VIDES TRES ELEVES

L'enceinte à vide primaire comprend une pompe mécanique, marque Beaudoin, qui donne un vide limite de l'ordre de 10^{-3} mm Hg, associée à une pompe à diffusion d'huile à deux étages dont le vide limite est 10^{-7} mm Hg lorsque le fluide utilisé est l'huile C 627, marque Apiezon.

Le corps de la pompe à diffusion est un cylindre en verre pyrex, alors que les deux étages à l'intérieur sont en acier inoxydable. Des ailettes en aluminium assurent la condensation des vapeurs d'huile par l'air ambiant . L'ébullition de l'huile est obtenue, par exemple, au moyen d'un chauffe-ballons électrique de petites dimensions.

Le vide atteint par la pompe primaire est mesuré avec une jauge Pirani marque LKB. Une jauge à ionisation marque CSF, modèle EJ 1011, du type Bayard-Alpert est destinée à contrôler le bon fonctionnement de la pompe à diffusion et à mesurer le vide limite que celle-ci fournit. En l'absence de fuites, ce vide dépend de l'intensité du chauffage de l'huile de la pompe à diffusion et de la nature du fluide qu'elle contient.

Nous avons utilisé successivement trois huiles différentes de pompe à diffusion, les huiles Octoil S marque Distillation Products, silicone 703 marque Dow Corning et C 627 marque Apiezon. Dans la littérature, des tensions de vapeur de l'ordre de 5×10^{-8} mm Hg leur sont attribuées mais leur emploi nous a permis d'atteindre dans l'appareillage convenablement dégazé des vides limites de 3×10^{-7}, 2×10^{-7} et 10^{-7} mm Hg respectivement. Ces valeurs sont en bon accord avec celles qu'obtint récemment Haefer[24] au cours de l'étude des principes fondamentaux qui doivent être observés lors de la construction des pompes à diffusion d'huile.

Le chauffage de l'huile d'une pompe à diffusion revêt une grande importance et conditionne partiellement le fonctionnement de la pompe. L'ébullition de l'huile doit être douce et régulière. Dans ces conditions ce fluide demeure inaltéré en principe très longtemps (en l'absence d'oxydation due à une rentrée d'air sur l'huile chaude). Il semble cependant que les huiles de silicone

soumises à une longue exposition à température élevée ne sont pas stables. Leurs produits de décomposition ou (et) de polymérisation apparaissent assez rapidement et sont particulièrement gênants du fait qu'ils se déposent sur les parois de l'appareil et sont ensuite très difficiles à éliminer. Cet inconvénient n'existe pas avec les huiles Apiezon C ou Octoil S, que nous employons maintenant de préférence aux huiles de silicone.

Le groupe de pompage comprend également un piège à anhydride phosphorique destiné à protéger l'huile de la pompe à palettes de la vapeur d'eau qui est désorbée lors d'un chauffage de l'appareil (désorption intervenant surtout après des soudures effectuées sur la verrerie de l'ensemble).

Un volant de vide permet le fonctionnement continu de la pompe à diffusion sans l'intervention constante de la pompe primaire. La présence de cette réserve de vide n'est pas indispensable dans notre appareillage car, ainsi que nous le verrons ultérieurement, la pompe à diffusion ne fonctionne que durant les périodes de dégazage de l'ensemble. Les vibrations provoquées par la pompe palettes ne sont donc que temporaires.

Le piège à gaz liquéfié permet d'abaisser de 3×10^{-7} à 1×10^{-7} mm Hg le vide limite de la pompe à diffusion.

Le tube pyrex en forme d'omega absorbe les dilatations qui se produisent lorsqu'une partie de l'appareil est portée à haute température en vue d'un dégazage (figure 9).

Vanne pour vide très élevé

Nous avons vu dans le premier Chapitre que l'obtention de pressions inférieures à 10^{-7} mm Hg exige l'utilisation de dispositifs d'arrêt (actuellement métalliques) capables de supporter sans inconvénient des chauffages prolongés à haute température et d'isoler efficacement des enceintes sous une pression de l'ordre de 10^{-10} mm Hg.

Alpert[2], le premier, créa une vanne métallique répon-

dant à ces conditions (figure 1). Les organes métalliques de cette vanne, comme ceux de la vanne de Bills et Allen qui en dérive[12], sont reliés entre eux au moyen de brasures à l'argent (cupule en cuivre, membrane plissée, pointeau et tubes en kovar).

Dans les premiers dispositifs à vide très élevé que nous avons tenté de réaliser nous avons constaté que ces brasures, après un certain nombre de chauffages à 400°C en vue d'un dégazage, finissent par rendre poreux les matériaux sur lesquels elles sont déposées. Notre observation rejoint ainsi celle de Guthrie et Wakerling (25). En outre, lors d'un dégazage sous vide à 400°C, l'argent qui est un des constituants de l'alliage à braser distille parfois et se dépose sur les parois froides de l'appareillage qui ne sont pas soumises au chauffage. De ce fait, l'argent absorbe des gaz qui sont susceptibles de se désorber aux pressions suffisamment faibles, reculant ainsi la limite inférieure du vide atteint par la pompe à diffusion d'huile et par l'enceinte sous très faible pression.

Pour toutes ces raisons, nous avons réalisé une vanne métallique ne comportant aucune pièce brasée et de surcroît entièrement démontable (figure 10).

Nous sommes parvenus à ce résultat grâce à l'emploi de jonctions métal-cuivre (figure 11) qui possèdent une étanchéité remarquablement élevée, comme le montre une très faible conductance de fuite entre la pression atmosphérique et la pression de 10^{-10} mm Hg.

La vanne ainsi conçue[26] est représentée sur la figure 10. Elle nous permet d'obtenir de façon reproductible des vides de l'ordre de 10^{-10} mm Hg, mesurés avec une jauge à ionisation du type Bayard-Alpert, après avoir dégazé la vanne et l'enceinte à vide très élevé, dont le volume est de 350 cc, à 200°C seulement pendant 3 heures. Ce résultat semble être la conséquence de la très faible conductance de fuite de la vanne lorsque celle-ci est fermée.

Pour la vanne munie du pointeau conique représenté sur la figure 10, deux cas sont à considérer comme nous le verrons plus loin :

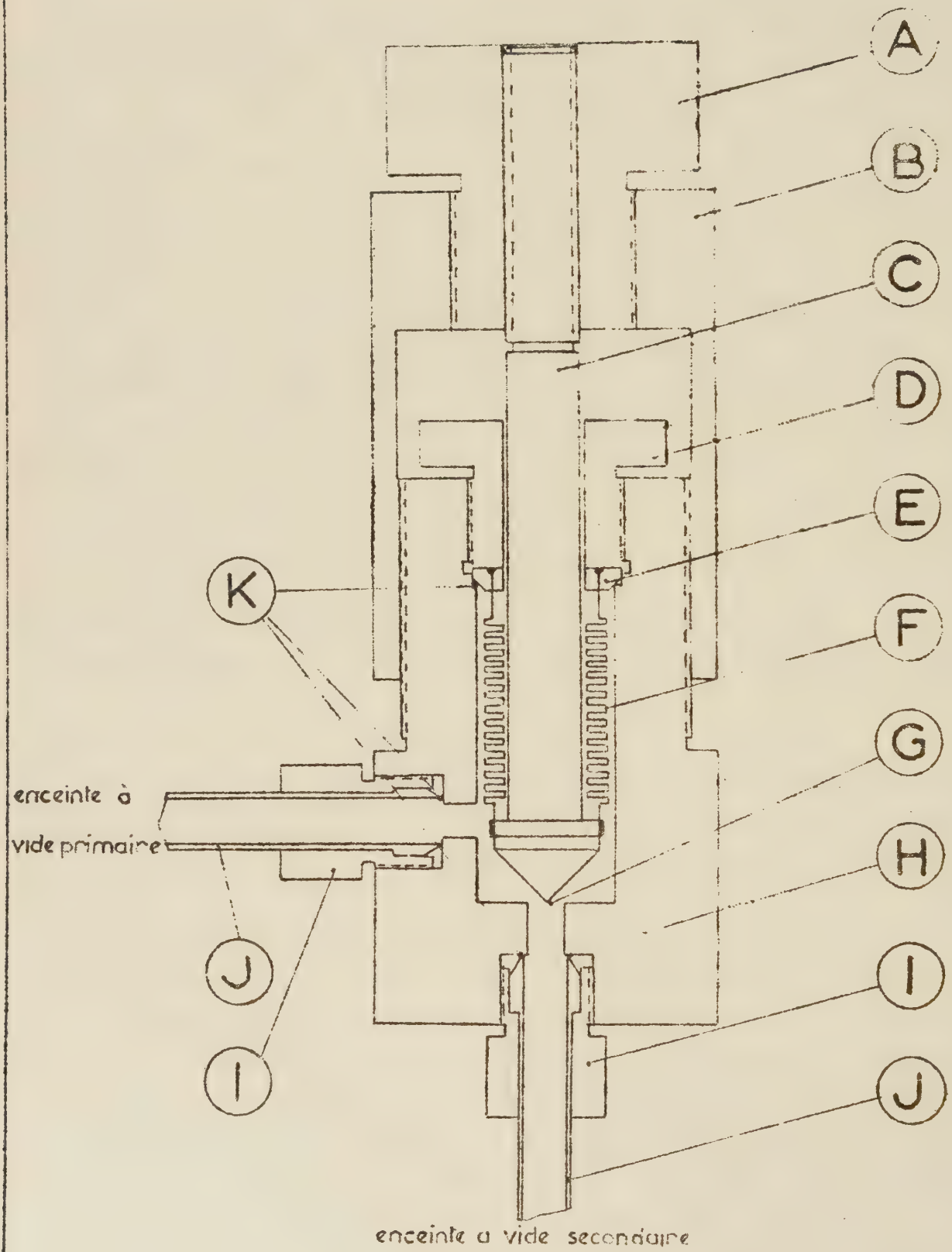


FIGURE. 10 VANNE POUR VIDE TRES ELEVE

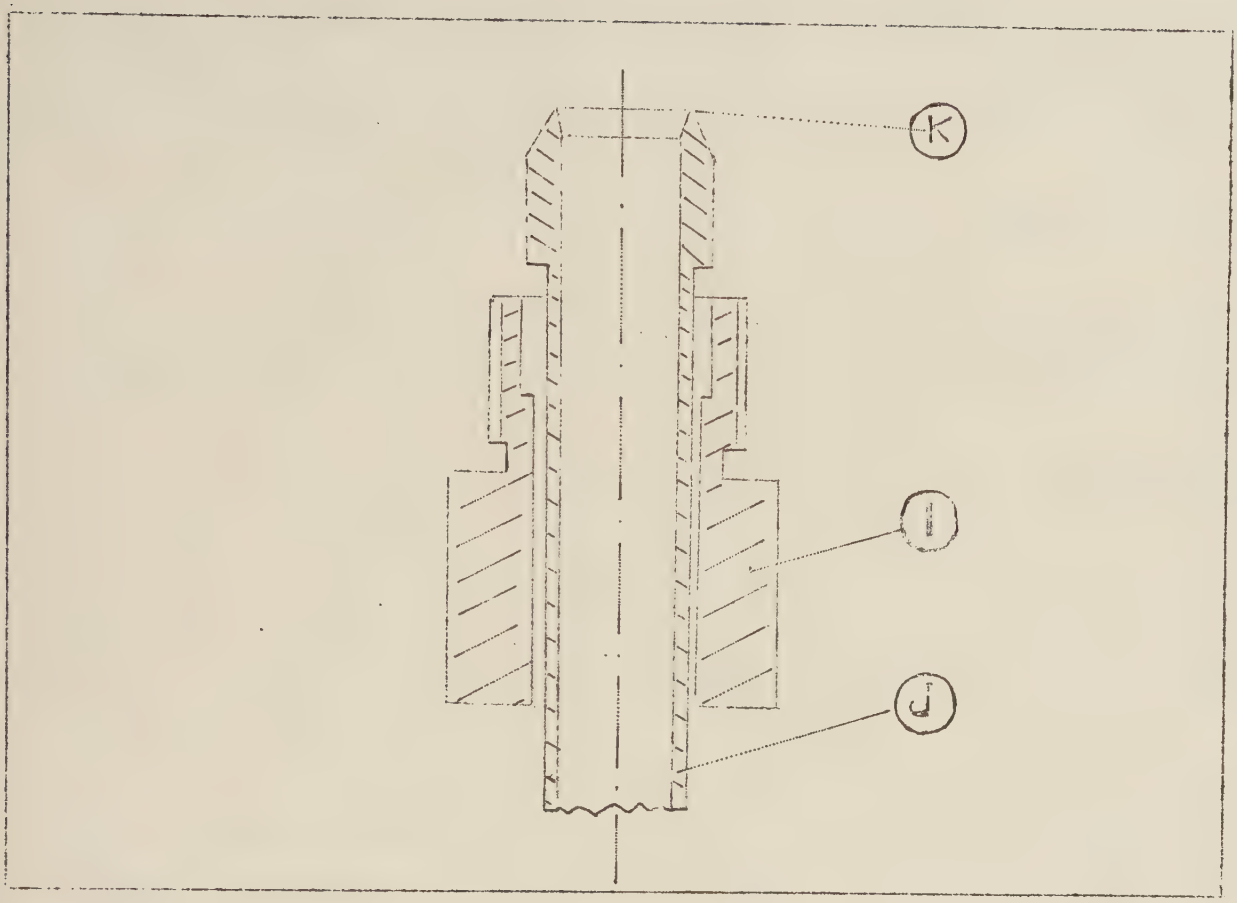


Figure 11 - Vue en coupe d'un joint kovar-cuivre

- Lorsque la pression dans l'enceinte à vide primaire comprenant la pompe à diffusion est de l'ordre de 10^{-3} mm Hg, la conductance de fuite de la vanne est d'environ 10^{-13} l/sec., valeur qui est celle des meilleures vannes pour vide très élevé réalisées jusqu'à ce jour.

- Lorsque cette pression est la pression atmosphérique (abréviation: p. atm.), la conductance diminue régulièrement avec le temps, de 10^{-13} l/sec. à 10^{-18} l/sec.

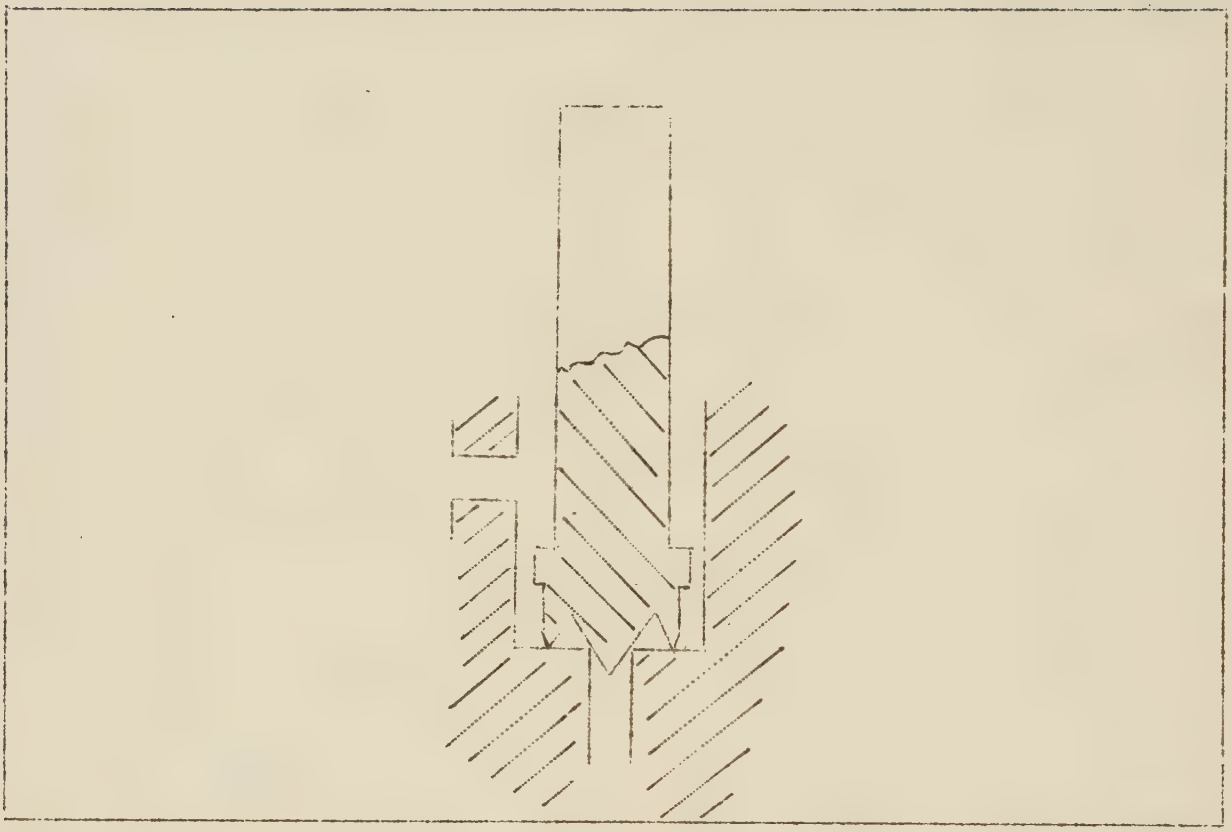


Figure 12 - Pointeau (GK) à conductance de fuite nulle

La même vanne équipée d'un obturateur comprenant en plus du pointeau conique qui sert de guide, une partie conique biseautée à 45° (figure 12) a une conductance de fuite nulle, à la précision des mesures près, quelle que soit la pression de gaz qui s'exerce sur l'obturateur du côté de l'enceinte à vide primaire.

Description

La vanne comprend essentiellement les organes suivants (figure 10).

Un cylindre (H) en cuivre électrolytique H.C. constitue

le corps de la vanne. Ce métal a été choisi notamment à cause de son excellente conductibilité thermique, de son fort pouvoir adsorbant vis à vis des gaz, et de son importante malléabilité. Ces propriétés dans l'ordre énoncé permettent :

1°) d'atteindre rapidement la température maximum choisie pour le dégazage,

2°) d'améliorer le vide pendant le refroidissement de la vanne fermée vers 130°C après qu'une pression de l'ordre de 10^{-7}mm Hg soit établie,

3°) d'effectuer un grand nombre de fermetures successives de la vanne sans que la conductance de fuite augmente.

Le corps de la vanne comprend 4 logements au fond desquels sont réalisées les jonctions métal-cuivre (K et G). Deux tubes effilés en kovar (figure 11) et le pointeau en acier inoxydable constituent ces jonctions.

La liaison étanche entre la vanne et la pompe à diffusion, et entre la vanne et la rampe à vide très élevé est assurée à l'aide de deux tubes en kovar (J) soudés au pyrex, dont les extrémités métalliques biseautées suivant un angle de 45° pénètrent dans des sièges en cuivre du corps de la vanne. Ces tubes comportent chacun un épaulement servant de butée à une vis de fixation et de serrage (I). Du fait de la grande malléabilité du cuivre, plusieurs démontages de ces joints kovar-cuivre ne modifient nullement l'étanchéité de la vanne.

Le kovar a été choisi pour réaliser les liaisons vanne-verrerie pyrex à cause de son coefficient de dilatation voisin de celui du pyrex dans un large domaine de températures (0-500°C).

Un obturateur (C), constitué par une seule pièce en acier inoxydable, assure la fermeture de la vanne. Nous avons fait la quasi-totalité des essais de notre appareillage en utilisant des obturateurs du type de celui qui est schématisé sur la figure 10. Nous ne mentionnerons qu'à la fin de ce travail les résultats très intéressants obtenus avec le dispositif représenté sur la figure 12.

L'obturateur (C) se termine d'un côté par une surface polie conique à 90° (pointeau (G)) et de l'autre par un filetage. L'obturateur est soudé à un tube plissé (F) en acier inoxydable qui est fixé de manière identique à la tête d'obturateur (E) également en acier inoxydable. Le tube plissé a été réuni aux autres pièces par soudure électrique en atmosphère d'argon. Un tel procédé de soudure sans métal d'apport évite toute inclusion de gaz ou de carbone dans l'acier dont la structure reste inchangée. L'absence de porosité est ainsi constatée, même après plusieurs dizaines de chauffages de la pièce lors des dégazages.

Remarquons que l'acier inoxydable utilisé pour la fabrication des pièces (C) (F) (E) peut être avantageusement remplacé par le kovar ou le dilver P par exemple. Le fait sur lequel il importe d'insister est que les trois pièces mentionnées ci-dessus doivent être en matériau de même nature, afin de pouvoir être soudées les unes aux autres sous atmosphère d'argon sans aucun apport de métal. Ce n'est que dans ces conditions que les soudures réalisées sont étanches.

Un écrou de serrage (D) en acier inoxydable sert à plaquer avec la pression désirée la partie inférieure conique de la tête d'obturateur (E) indépendante de l'écrou fileté (D) sur le siège de la vanne. Un joint étanche acier inoxydable-cuivre est réalisé de cette manière.

Le tube souple (F) est formé d'une membrane cylindrique plissée de 1/10 mm d'épaisseur et permet au pointeau (G) de se déplacer de plus de 5 mm par rapport à sa position d'obturation. Cet écartement maximum est environ le double de celui qu'autorisent les membranes planes plissées utilisées dans les vannes d'Alpert[2] et de Bills et Allen[12]. La membrane de notre dispositif travaille, pour la course de 5 mm, dans le domaine d'élasticité de l'acier inoxydable. Un dispositif de poussée applique le pointeau (G) contre son siège. Ce mécanisme de commande agit sur la partie filetée de l'obturateur. Il comprend un bouton moleté (A) en acier inoxydable ayant un pas intérieur de 125 et un pas extérieur de 100. L'obtura-

teur (C), le manchon de serrage (B) en acier et le bouton moleté (A) constituent le dispositif différentiel assurant un avancement du pointeau (G) de 25/100 mm par tour du bouton moleté. La pression appliquée sur le pointeau (G) est variable à volonté et peut atteindre plusieurs tonnes/cm2.

Le manchon (B) permet le montage et la fixation du système de poussée différentiel sur le corps de la vanne. Lors d'une manipulation d'ouverture ou de fermeture du pointeau (G) par l'intermédiaire du bouton moleté (A), le manchon (B) reste immobile par rapport au corps de la vanne (H). Mais sa position sur le corps de la vanne est réglable grâce à ses deux filetages intérieurs au pas de 100. Il constitue ainsi une butée variable pour le bouton moleté (A), assurant de cette manière une ouverture maximum du pointeau (G) réglable à volonté. Il est donc possible de reproduire des conductances du pointeau bien déterminées.

La vanne métallique décrite, de conception entièrement nouvelle, permet d'obtenir et d'isoler de la pression atmosphérique pendant des temps très longs des enceintes sous des pressions de l'ordre de 10^{-10} mm Hg. Les jonctions métal-cuivre utilisées rendent cette vanne entièrement démontable. Une conductance de fuite aussi faible n'a pas été atteinte dans des vannes pourtant soudées et non démontables. Quelques centaines de fermetures de l'obturateur et plusieurs démontages de la vanne laissent inchangée la conductance de fuite.

La liaison aisée de cette vanne à tout appareil en verrerie, sa facilité de démontage et sa très faible conductance de fuite en font un outil particulièrement adapté à la technique du vide très élevé.

Enceinte à vide secondaire

Cette enceinte appelée aussi rampe à vide très élevé est de petites dimensions. Son volume est d'environ 350 cc.

Elle comprend, à partir du raccord kovar-pyrex (J)

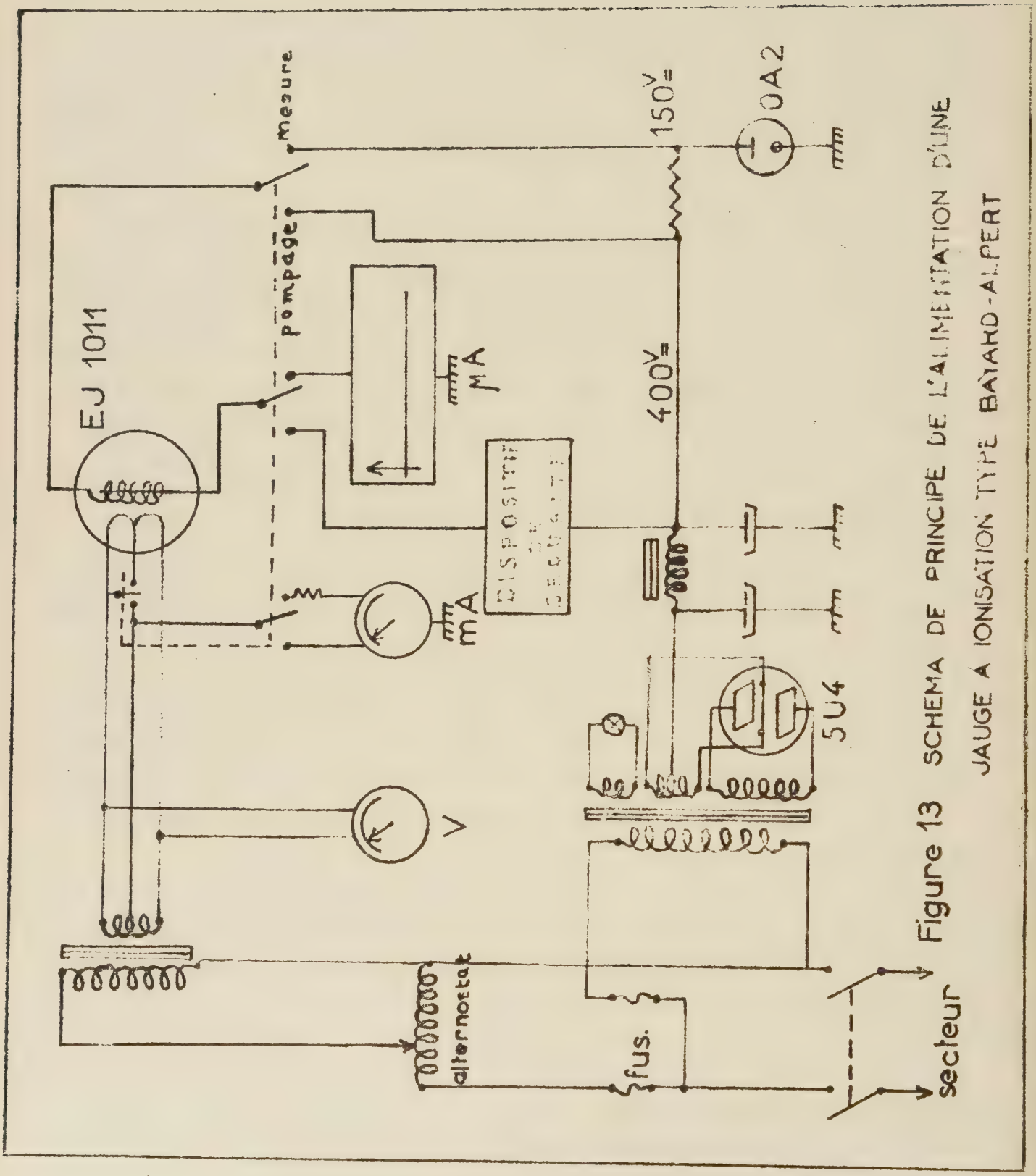


Figure 13 SCHEMA DE PRINCIPE DE L'ALIMENTATION D'UNE JAUGE A IONISATION TYPE BAYARD-ALPERT

(figure 11) qui la réunit au corps de la vanne (figure 10), une jauge Pirani marque LKB, un piège en U et une jauge à ionisation CSF EJ 1011 du type Bayard-Alpert. Ces deux manomètres sont capables de supporter sans inconvénient un dégazage prolongé à 200°C (pouvant atteindre 450°C). Ils permettent la mesure des pressions comprises entre 100 mm et 10^{-10} mm de mercure.

L'alimentation de la jauge à ionisation est conforme à la figure 13. Les deux filaments de la triode peuvent être portés simultanément à l'incandescence et un potentiel de + 500 volts est appliqué sur la grille reliée au collecteur d'ions, ce qui produit un dégazage rapide et complet de la grille et du collecteur d'ions par bombardement électronique. Le dégazage de la grille est également possible en la chauffant directement par Effet Joule; dans ce cas, les filaments ne sont plus employés que pour la mesure de la pression qui règne dans l'enceinte à vide secondaire, ce qui augmente leur durée d'utilisation.

La stabilisation du courant de chauffage du filament unique utilisé lors de la mesure de la pression permet d'obtenir un courant ionique sans fluctuations (donc une mesure plus précise du vide) et simplifie la recherche de fuites éventuelles au moyen d'un coton imbibé de solvant organique.

Le tube pyrex en U (L_2, figure 9) sert à examiner l'influence d'un piégeage à l'azote liquide sur le vide plus ou moins élevé qui règne dans l'enceinte. Dans une installation convenablement dégazée, la diminution de pression consécutive à cette addition est peu importante. Lorsque cette variation est notoire, on peut conclure à la présence dans l'enceinte de composés qui ont une tension de vapeur non négligeable à la température ordinaire et leur origine doit alors être recherchée.

La vanne et l'enceinte à vide très élevé sont coiffées par un four durant la totalité du dégazage. L'élément chauffant est une résistance de 1500 watts disposée sur le même plan horizontal que la vanne. Ce dispositif permet de porter l'ensemble, de la

température ambiante à 200°C, en 30 minutes environ. La résistance chauffante est alimentée "tout ou rien" par l'intermédiaire d'un régulateur électronique Sensilab type P a sf marque Brion-Leroux. Le thermocouple chromel-alumel pour la mesure de la température est logé dans le corps en cuivre de la vanne qui constitue un volant thermique de choix.

CHAPITRE III

CONDITIONS D'UTILISATION ET PERFORMANCES DE L'APPAREILLAGE A VIDE TRES ÉLEVÉ

Conditions d'utilisation de l'appareillage

Les différentes opérations nécessaires à l'obtention, dans la rampe à vide secondaire, d'une pression de l'ordre de 10^{-10} mm Hg en partant de la pression atmosphérique, sont les suivantes:

- L'obturateur de la vanne étant en position ouverte, il est procédé à l'évacuation à l'aide de la pompe à palettes. En l'absence de fuites, une pression de quelques 10^{-3} mm Hg est atteinte après 15 minutes environ. Les fuites éventuelles sont recherchées dans les parties en verre à l'aide d'un détecteur de fuites à hautes fréquences marque Edwards, modèle T.2. Pour la recherche des fuites dans les organes métalliques superficiels de la vanne et les raccords kovar-pyrex, nous utilisons un coton imbibé d'acétone par exemple et les jauges Pirani comme éléments sensibles.

- L'opération de dégazage est ensuite réalisée. Le four est disposé au-dessus de la rampe à vide très élevé comprenant la vanne, puis la résistance chauffante est mise sous tension. La température de 200°C est atteinte en ½ heure. L'air qui entoure l'enceinte à vide secondaire s'échauffe d'abord jusqu'à 250°C pendant la montée de température. Il est ensuite à 200°C durant le dégazage.

- Dès que la température de 200°C est atteinte, tout risque de brisure de la verrerie est exclu aussi la pompe à diffusion est-elle mise en chauffe. Elle fonctionne au bout de 30 minutes environ.

Le chauffage à 200°C est poursuivi durant 3 heures. Dix

minutes seulement avant sa cessation, de l'azote liquéfié est mis autour du piège situé près de la pompe à diffusion; son niveau est maintenu constant.

- Le chauffage du four est ensuite arrêté et 15 minutes après, l'enveloppe coiffant toujours l'appareillage, le dégazage des éléments métalliques de la jauge à ionisation est réalisé. Cette opération est possible sans enlever l'enveloppe du four grâce à l'emploi, pour l'amenée du courant à la jauge, de fils électriques à gaines de verre qui résistent à des températures d'au moins 500°C et restent par conséquent en place durant les dégazages, supprimant en même temps les mauvais contacts dus à une oxydation des tiges de tungstène extérieures de la jauge.

- Le dégazage proprement dit des éléments de la jauge à ionisation est obtenu par bombardement électronique (courant i_e de 100 m A) de la grille et du collecteur d'ions qui sont portés à 1000°K environ. Les deux filaments de la jauge chauffés à plus de 2000°K constituent la source d'électrons. Chaque opération de dégazage de la grille et du collecteur d'ions doit être brève, afin d'éviter une déformation trop importante des spires de la grille.

- A la fin du dégazage de la jauge qui dure 30 minutes environ, l'air du four est à 80°C et la vanne à 130°C. La coiffe isolante enlevée , le dispositif d'obturation de la vanne est actionné au moyen d'une courte tige qui trouve 3 logements dans le bouton moleté (A) (figure 10).

- Le dewar contenant l'azote liquide est abaissé, les pompes primaire et à diffusion d'huile sont arrêtées. L'enceinte à vide primaire, isolée de l'extérieur par un robinet à trois voies, est sous une pression de 3×10^{-3} mm Hg qui reste très longtemps inchangée.

- Le refroidissement de la vanne par l'air ambiant(jusqu'à la température ordinaire) exige 45 minutes environ. Il est immédiatement suivi de l'opération de mesure et de diminution de la pression au moyen de la jauge à ionisation. Dans les conditions normales de mesure, les tensions appliquées sont : + 150 volts sur la grille,

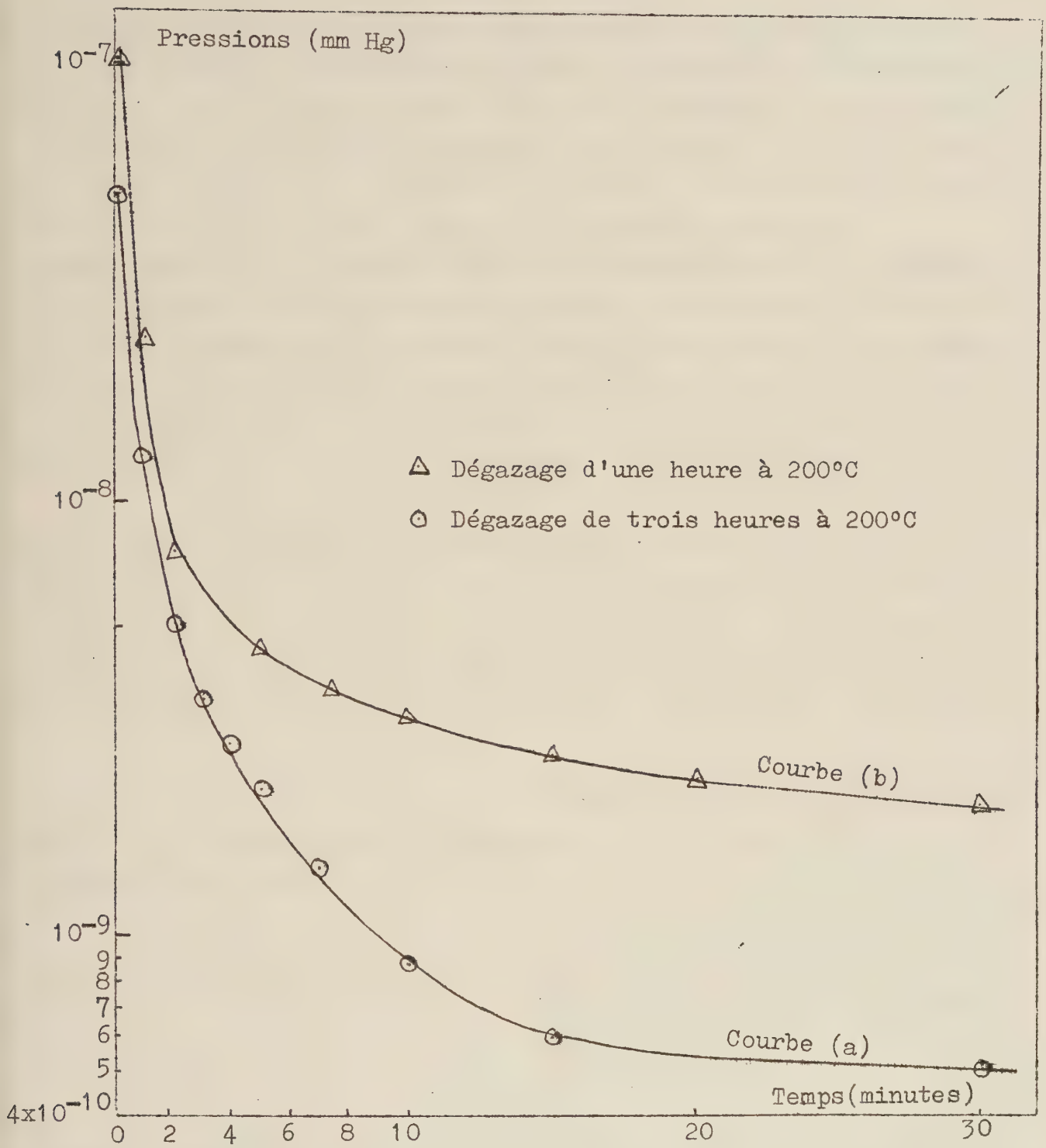


Figure 14 - Effet de pompage de la jauge à ionisation dans l'enceinte à vide secondaire.

-22 volts sur le collecteur d'ions, tensions déterminées par rapport au filament qui est au potentiel zéro. La tension filament est augmentée jusqu'à obtention d'un débit anodique i_e de 10 m A . Pour la jauge CSF EJ 1011, un courant ionique de 1,2 μ A correspond alors à une pression de 10^{-5} mm Hg, à 1 % près.

Nous disposons pour la mesure des très faibles courants continus, de deux galvanomètres, marque Sefram . L'un d'eux, type ST1 BD-C, à cadre immergé dans un liquide, est particulièrement adapté pour suivre une variation continue de la pression entre 5×10^{-7} et 5×10^{-9} mm Hg. Les pressions inférieures à 5×10^{-9} mm Hg sont mesurées à l'aide d'un autre appareil, type LT6, dont le cadre est mobile dans l'air. Sa sensibilité (4×10^{-11} A/mm) le rend apte à la mesure des vides de l'ordre de 10^{-10} mm Hg.

En conclusion, notre appareillage permet de passer de la pression atmosphérique à une pression de l'ordre de 10^{-10} mm Hg par dégazage à 200°C seulement, pendant 3 heures. La durée totale de l'opération est inférieure à 6 heures, laps de temps qui justifie l'absence de dispositifs de sécurité sur l'enceinte à vide primaire.

Performances de l'appareillage

La courbe (a) de diminution de la pression avec le temps peut être tracée. Elle est représentée sur la figure 14 et appelle quelques remarques.

- La vitesse de pompage S d'une pompe conventionnelle est donnée par l'expression:

$$S = - \frac{V}{p} \times \frac{dp}{dt} \qquad (1)$$

où dp est la variation de pression qui se produit pendant le temps dt dans l'enceinte de volume V sous la pression p.
En écrivant l'équation précédente sous la forme :

$$S = - V \times \frac{d \, \mathrm{Log} \, p}{dt} \quad ,$$

on peut calculer la vitesse moyenne de pompage S_m de la jauge à ionisation dans le domaine de pressions (p_1-p_2) au moyen de l'expression :

$$S_m \text{ (cm3/s)} = 2{,}3 \times \frac{V \text{ (cm3)}}{t_2-t_1} \times \log_{10} \frac{p_1}{p_2} \qquad (2)$$

t_2-t_1 (en secondes) représentant le temps nécessaire à la jauge pour abaisser la pression de la valeur p_1 à la valeur p_2.

Les valeurs numériques des vitesses moyennes de pompage ainsi déterminées sur la courbe (a) (figure 14) sont données dans le Tableau I.

TABLEAU I

Domaine de pressions (mm Hg)	5×10^{-8}-1×10^{-8}	1×10^{-8}-5×10^{-9}	5×10^{-9}-1×10^{-9}	1×10^{-9}-5×10^{-10}
S_m (cm3/s)	10	3,4	1,4	0,2

Ces résultats montrent que la vitesse de pompage de la jauge diminue très rapidement avec la pression. Un tel phénomène est partiellement dû au fait que, pour une énergie donnée des électrons émis par le filament, la probabilité d'ionisation dans la jauge diminue avec le nombre de molécules présentes donc avec la pression. De plus, il est permis de penser que les parois en verre et les parois métalliques de l'enceinte à vide très élevé désorbent des molécules à une vitesse qui est proportionnelle à la différence entre les nombres de molécules qui se trouvent dans le système au temps 0 et au temps t [(1) Robinson p.35] . De ce fait, la vitesse moyenne de pompage S_m calculée par l'équation (2) apparaît comme la différence entre la vitesse de pompage réelle de la jauge à ionisation et la vitesse de désorption des molécules fixées sur les parois. Mais cette vitesse de désorption dépend du degré de dégazage des parois. S_m varie donc finalement avec ce facteur, ce qu'illustrent les courbes(a)

et (b) de la figure 14. En effet, dans le domaine de pressions ($1x10^{-8}$ - $5x10^{-9}$)mm Hg, S_m est de 3,4 cm3/s lorsque l'enceinte à vide poussé a été dégazée durant 3 heures à 200°C (courbe a),alors qu'elle n'est que de 1,4 cm3/s dans ce même domaine de pressions après dégazage d'1 heure seulement à 200°C (courbe b).

La vitesse de pompage S_m déduite d'une courbe de diminution de la pression en fonction du temps n'est pas, de ce fait, caractéristique d'une jauge à ionisation donnée.

En l'absence de fuites du même ordre de grandeur que S_m, la lente diminution de la pression avec le temps, dans le domaine des vides très élevés, se poursuit en principe aussi longtemps que la jauge fonctionne (2). La limite inférieure de la pression obtenue résulte de la diffusion de l'hélium atmosphérique au travers des parois de l'enceinte et de la désorption des gaz fixés sur la surface des parois ((1), Robinson p.37) . Lorsque la jauge à ionisation est éteinte après avoir fonctionné pendant plusieurs heures, l'augmentation ultérieure de la pression est lente et celle-ci n'atteint pas la valeur initiale de 10^{-7} mm Hg, contrairement à ce qui se passe lorsque la jauge est restée allumée peu de temps. L'interprétation de ce phénomène ne semble pas encore avoir été donnée. Ainsi, en vue de maintenir le plus longtemps possible une très faible pression dans une enceinte vidée et étanche contenant une jauge à ionisation, il importe de laisser fonctionner au préalable la pompe ionique durant un très large intervalle de temps.

La pression qui s'établit à l'instant où la vanne revient à la température ordinaire après un dégazage (temps 0 des courbes de la figure 14), est inférieure à celle qui règne dans l'enceinte à vide secondaire au moment de la fermeture de la vanne chaude. Cette différence de pression doit être attribuée à l'action pompante des parois métalliques et en verre de l'enceinte. Le verre s'est avéré très bon "getter" aux basses pressions vis-à-vis des gaz normalement adsorbés sur les métaux. Notre observation rejoint celle de Robinson ((1) page 37) et justifie les opérations de dégazage de la jauge à ionisation puis de fermeture de la vanne, à

température élevée.

Cette amélioration du vide ne peut être mise en évidence que dans une enceinte rigoureusement étanche, pourvue d'une vanne pour vide très élevé ayant une conductance de fuite suffisamment faible. Dans le cas contraire, l'effet de l'élimination des gaz par adsorption sur les parois convenablement dégazées risque d'être annulé. Il ne paraît pas avoir été utilisé par les chercheurs qui ont travaillé sur la technique des vides très élevés, probablement parce qu'ils ne disposaient pas d'ensembles suffisamment étanches.

Nous pensons que la vitesse de pompage des parois décroît rapidement avec le temps, du fait de la brusque diminution du coefficient de condensation des molécules sur une surface lorsque son recouvrement croît. Mais cette action pompante est de très longue durée et peut être comparée à celle d'une jauge à ionisation fonctionnant dans une enceinte sous vide poussé. La confirmation de cette hypothèse est donnée par la portion (ABC) de la courbe de la figure 15, courbe qui représente la variation de la pression en fonction du temps dans la rampe à vide très élevé préalablement dégazée à 200°C pendant 2 heures, isolée de l'enceinte à vide primaire sous une pression de 3×10^{-3} mm Hg. au moyen de la vanne métallique précédemment décrite.

Il n'est fait aucune manoeuvre du dispositif d'obturation de la vanne pendant les 140 heures représentant la durée de l'expérience. Les valeurs numériques des points expérimentaux de cette courbe sont les indications de la jauge après 10 minutes de fonctionnement. Nous n'avons pas cru devoir retenir les indications instantanées de la jauge, qui dépendent de la période du galvanomètre employé pour mesurer le courant ionique i_p et du temps nécessaire pour ajuster le courant anodique i_e à la valeur de 10 m A.

Deux mesures successives de la pression sont effectuées au minimum à 10 heures d'intervalle. Nous nous sommes préalablement assurés que ce laps de temps est supérieur à celui qui est nécessaire pour que la totalité des particules gazeuses captées par le collecteur d'ions et les parois de la jauge durant les 10 minutes

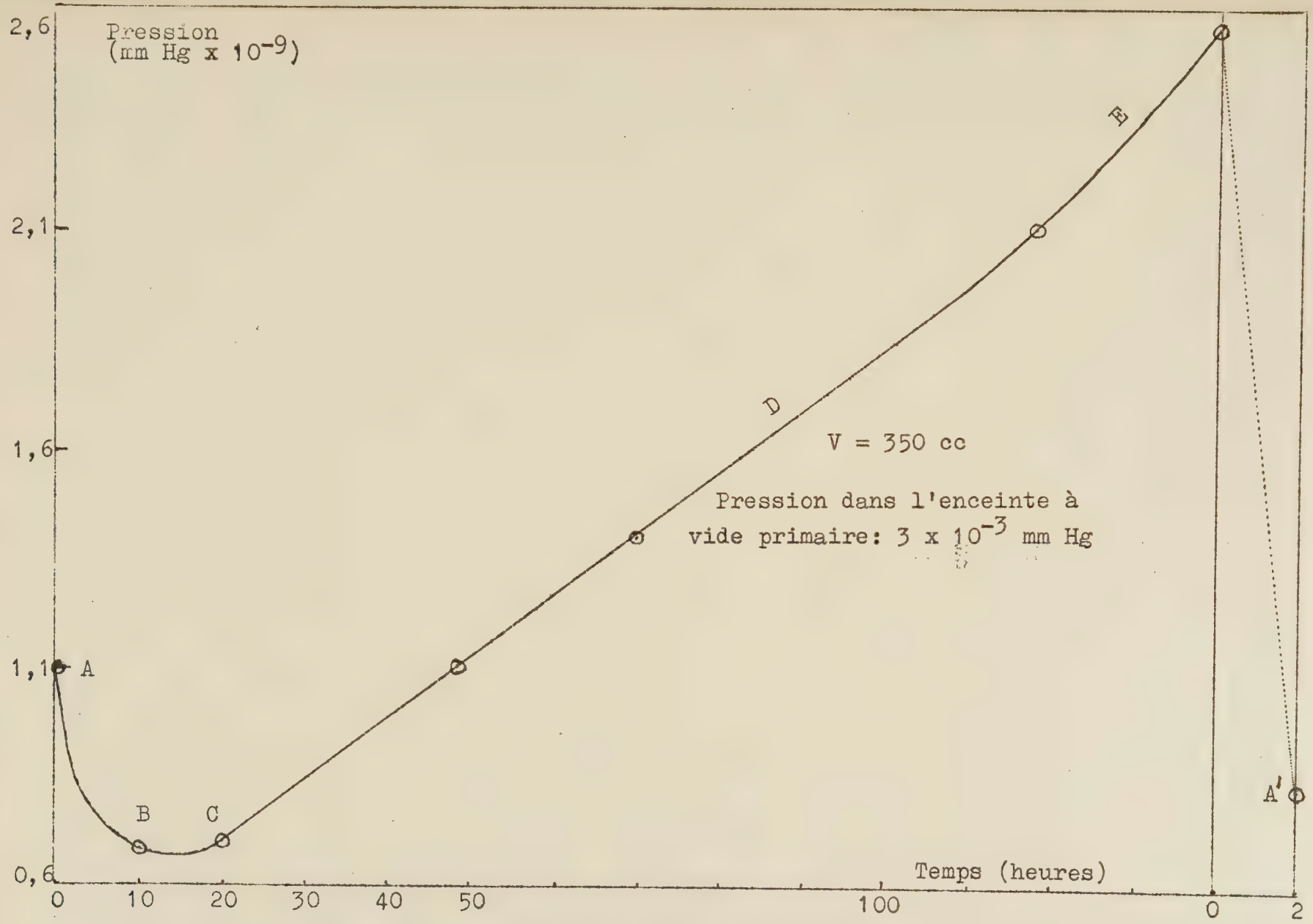


Figure 15 - Variation de la pression dans l'enceinte à vide très élevé.

de fonctionnement de celle-ci, se désorbent entre deux manipulations successives de la jauge.

Dans ces conditions, la jauge élimine par pompage une certaine quantité de gaz au cours de chaque mesure et comme sa vitesse de pompage croît avec la pression, une légère erreur est commise sur la pente de la courbe de la figure 15.

La portion en U de la courbe paraît devoir être attribuée à l'action pompante de la totalité des parois internes de l'enceinte à vide très élevé car 20 heures après la première mesure de la pression le vide s'est amélioré, en dépit de la rentrée des gaz dans l'enceinte due à la conductance de fuite du pointeau de la vanne et du joint kovar-cuivre de la rampe à vide secondaire.

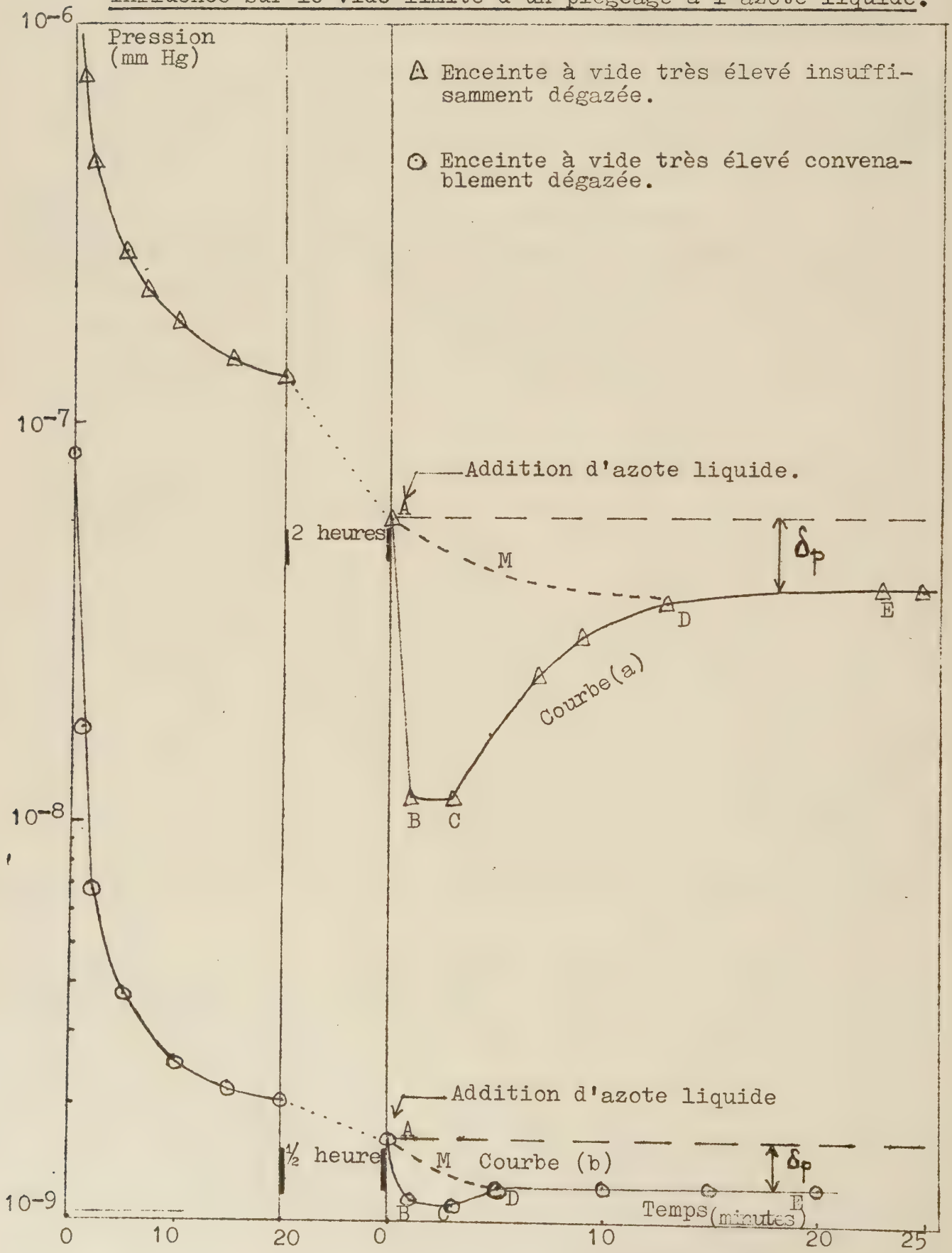
A partir de 20 heures, et jusqu'à 140 heures, il y a probablement un équilibre entre les vitesses d'adsorption et de désorption des gaz sur les parois, c'est-à-dire annulation de l'action pompante des parois et la portion linéaire de la courbe (CDE) traduit la conductance de fuite de la vanne ($4,5 \times 10^{-13}$ l/sec).

Pour montrer la reproductibilité de l'action pompante des parois, nous avons réalisé une seconde expérience après 140 heures. Le point expérimental A' est le résultat d'une mesure effectuée 2 heures après le refroidissement de la vanne jusqu'à la température ordinaire (nouveau temps 0), l'enceinte à vide très élevé ayant subi une opération de dégazage en tous points semblable à la première. La pression obtenue après 10 minutes de fonctionnement de la jauge est comprise entre les pressions des points A et B. Aucune détermination de la pression n'a été faite au nouveau temps 0.

Ainsi la courbe(A B C D E)(figure 15) traduit d'abord l'action pompante des parois de l'enceinte à vide très élevé (ABC), puis la conductance de fuite de la vanne (CDE).

Figure 16 -

Influence sur le vide limite d'un piégeage à l'azote liquide.



Influence sur le vide limite d'un piégeage à l'azote liquide.

Après l'obtention, dans l'enceinte à vide secondaire, d'une pression pour laquelle l'action pompante de la jauge à ionisation est faible, de l'azote liquide est versé dans le dewar disposé autour du piège L_2 (figure 9) de la rampe à vide très élevé. Il en résulte presque instantanément une diminution de la pression (courbes (a) et (b) figure 16).

Cette variation est d'autant plus accentuée (portion ABC) que la pression résiduelle est plus forte. Ainsi la courbe(a) est déterminée après un dégazage de 2 heures à 200°C, dégazage consécutif au démontage de la totalité des organes de la vanne. Il est précisé ultérieurement que les joints (K) de la vanne ne redeviennent parfaitement étanches que 48 heures environ après leur mise sous vide, ce qui explique l'obtention d'un vide limite peu élevé dans cette expérience (courbe (a), figure 16). La courbe(b) est au contraire relative à l'enceinte à vide secondaire dégazée durant 1 heure seulement à 200°C et à la vanne maintenue sous une pression au plus égale à 10^{-7} mm Hg pendant 3 jours.

Il est significatif que l'addition d'azote liquide ne se traduit pas par une amélioration du vide suivant (A M D E), mais selon la courbe(A B C D E). Cette observation s'interprète en remarquant que la création d'un point froid dans l'enceinte à vide très élevé produit un appel brusque, vers cette partie refroidie, des molécules de gaz situées de part et d'autre du piège L_2 et par conséquent une diminution de la pression mesurée par la jauge (portion ABC des courbes (a) et (b)). Toutefois la pression diminue à droite du piège L_2 du fait de l'action pompante de la jauge, alors qu'elle ne doit plus varier à gauche de L_2. Aussi les deux pressions tendent-elles ensuite à s'égaliser dans l'enceinte à vide secondaire, à travers le piège (portion C D E).

Globalement le piégeage à l'azote liquide d'une fraction de l'enceinte se traduit toujours par une diminution appréciable δp de la pression dans un temps plus court que celui nécessaire pour atteindre, sans piège, le vide limite donné par la jauge à ionisation (pour un état de dégazage donné de l'enceinte à vide

très élevé). Dans les deux cas représentés sur la figure 16, la pression est diminuée de 33 % (courbe (a)) et de 23 % (courbe (b)) en un temps de l'ordre de 10 minutes.

Quelle que soit la nature exacte du phénomène, l'allure des courbes de la figure 16 diffère assez nettement de celle des courbes obtenues par Hobson et Redhead [22] (figure 8) qui n'observent apparemment pas de minimum après piégeage à l'hélium liquide. Cette différence est probablement due au fait que le point froid de leur appareillage est constitué par un doigt en T en communication avec la rampe à vide très élevé, tandis que dans le nôtre le point froid est un piège en U (L_2, figure 9) dans lequel doivent nécessairement passer les molécules de gaz allant de la partie de l'enceinte située à gauche de L_2 vers la pompe que constitue la jauge à ionisation.

Au cours de ces expériences, nous avons pû noter qu'il est important de maintenir constant le niveau du gaz liquéfié dans le dewar entourant L_2, afin que le volume refroidi de la rampe reste constant.

Conductance de la vanne

La conductance C d'un tube de longueur finie est par définition la quantité de gaz (exprimée par le produit pV) qui s'écoule par seconde au travers d'une section droite du tube, divisée par la différence entre les pressions p_1 et p_2 établies à l'extérieur et à l'intérieur du tube :

$$C = \frac{p\,V}{p_1 - p_2} \qquad (3)$$

C s'exprime en litres par seconde (abréviation: l/sec.) lorsque le volume V est en litres.

En posant p V = q, il vient $C = \frac{q}{p_1 - p_2}$ C apparaît comme un

débit unitaire ou le débit par unité de différence de pressions. C'est une constante pour un tube donné.

Dans le cas d'une vanne (ou plus généralement d'un dispositif d'arrêt), sa conductance varie de façon continue avec l'écartement du pointeau par rapport à son siège. Par contre, la conductance de fuite traduit l'étanchéité de la vanne lorsque le pointeau est en position fermée.

Les conductances de fuite des joints métal-cuivre (K) et du pointeau (G) de la vanne précédemment décrite (figure 10) ont été déterminées séparément.

Conductance de fuite des joints (K)

La méthode de calcul utilisée (méthode I) consiste à mesurer la vitesse d'accroissement de la pression en fonction du temps, $\frac{dp}{dt}$, dans la rampe sous vide très élevé isolée de l'enceinte à vide primaire.

Les pressions établies dans les enceintes à vides primaire et secondaire sont du même ordre de grandeur pour que la vitesse de passage des gaz au travers du pointeau soit négligeable devant celle due à la conductance de fuite du joint (K) reliant la vanne à la rampe à vide secondaire. La pression atmosphérique s'exerce sur l'extérieur de ce joint, alors qu'à l'intérieur est établi le vide très élevé.

La jauge à ionisation constitue le manomètre. Elle ne reste allumée que pendant la durée de chaque mesure (10 minutes). Deux mesures successives sont distantes d'au moins 10 heures et le plus souvent de 50 heures.

Nous avons vu que ces conditions expérimentales permettent de diminuer l'effet de pompage de la jauge à ionisation et d'approcher ainsi les valeurs réelles des pressions établies dans l'enceinte.

Pour appliquer cette méthode, il faut également s'assu-

rer au préalable de l'arrêt du phénomène de pompage par les parois (cf. portion de courbe CDE, figure 15).

Moyennant ces quelques précautions, la méthode I de détermination des conductances par l'équation (3) est reproductible.

Conductance de fuite du pointeau (G)

Deux méthodes de calcul de cette conductance ont été employées:

- la mesure de la vitesse d'augmentation de la pression en fonction du temps, $\frac{dp}{dt}$, dans la rampe à vide très élevé (méthode I),

- la mesure de la variation instantanée Δp de la pression dans cette même enceinte, due à la rapide augmentation de la pression dans le vide primaire (méthode II). Cette méthode due à Bills et Allen[12] consiste essentiellement à déterminer les variations de pression dans l'enceinte à vide secondaire au moyen de la jauge à ionisation qui est maintenue allumée durant la totalité de l'essai.

Les quantités qui doivent être déterminées au préalable sont la vitesse moyenne de pompage S_m de la jauge à ionisation dans le domaine de l'accroissement Δp de la pression, les pressions P_1 et P_2 appliquées successivement dans l'enceinte à vide primaire et la variation de pression Δp dans la rampe à vide très élevé due à l'augmentation de pression P_2-P_1.

La conductance de fuite C du pointeau (G) de la vanne est alors donné par l'expression:

$$\underset{(l/sec.)}{C} = \underset{(l/sec)}{S_m} \times \frac{\Delta p}{P_2-P_1} \qquad (4)$$

Calcul de S_m

La précision de la méthode II est tributaire de S_m, grandeur difficile à déterminer, comme il l'a été précisé antérieurement. La valeur numérique moyenne de S_m est calculée au moyen de l'équation (2) dans le domaine de pressions correspondant à l'augmentation de pression Δp.

La courbe de diminution de la pression (par effet de pompage de la jauge à ionisation) choisie pour calculer S_m est relative à l'appareillage ayant subi sensiblement le même dégazage que celui de l'expérience représentée par la courbe (a) de la figure 14 .

Calcul de Δp

Dès l'admission de la pression atmosphérique dans le vide primaire (point A, figure 17), la pression dans l'enceinte à vide très élevé croît rapidement (portion A B) puis se stabilise (B C) et après quelques minutes diminue lentement, de façon régulière (C D E).

La différence des pressions existant aux points B et A représente Δp et permet de calculer, au moyen de l'équation (4) (méthode II) la conductance de fuite du pointeau conique simple (G) (figure 10) au début de l'essai. Comme il est précisé plus loin, cette conductance de fuite diminue lorsque la pression atmosphérique dans l'enceinte primaire est maintenue pendant un temps suffisamment long (figure 17).

Les valeurs des conductances des pointeaux (G) et (GK) et des joints (K) déterminées au moyen des méthodes I et II sont résumées dans le Tableau II .

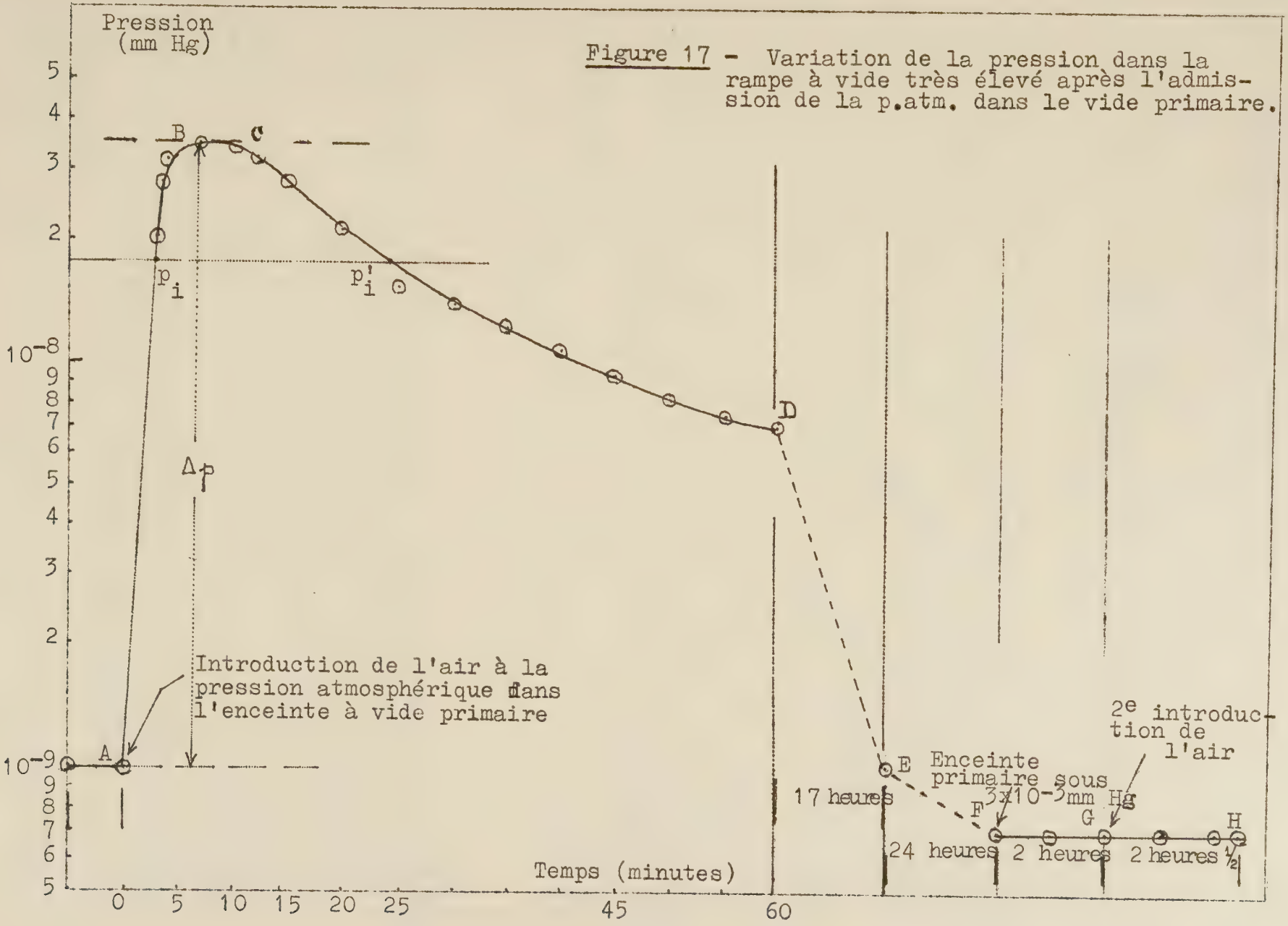


Figure 17 - Variation de la pression dans la rampe à vide très élevé après l'admission de la p.atm. dans le vide primaire.

TABLEAU II

Organe de la vanne	Méthode de calcul utilisée	Conditions expérimentales	Conductances de fuite(l/sec.)
Joints(K) kovar-cuivre (après obturation)	I	Vide primaire:1×10^{-7}mm Hg Vide secondaire:1×10^{-9}mm Hg	3×10^{-19}
Pointeau(G) (avant obturation)	I	Vide primaire:3×10^{-3}mm Hg Vide secondaire:$1,6 \times 10^{-9}$mmHg (Figure 15)	$4,5 \times 10^{-13}$
	II	$P_1 = 3 \times 10^{-3}$ mm Hg $P_2 = 760$ mm Hg $S \simeq 2$ cm3/sec. $\Delta p = 3,4 \times 10^{-8}$ mm Hg (point A, figure 17)	9×10^{-14}
Pointeau(G) (après obturation)	I	Vide primaire:760 mm Hg Vide secondaire:$1,5 \times 10^{-9}$mmHg (Figure 19)	$1,1 \times 10^{-18}$
Pointeau(G) (après obturation) et Pointeau(GK)	II	$P_1 = 3 \times 10^{-3}$ mm Hg $P_2 = 760$ mm Hg $S \simeq 0,2$ cm3/sec. $\Delta p < 3,3 \times 10^{-11}$ mm Hg	$<10^{-17}$

Ces résultats appellent des remarques et des précisions.

Les joints kovar-cuivre ont une conductance de fuite de l'ordre de 10^{-19} l/sec., 48 heures après la mise en service de la vanne démontée complètement au préalable. Il est probable qu'au début de l'expérience la conductance de fuite des joints (K) est de l'ordre de 10^{-13} l/sec., comme pour le pointeau (G).

L'étanchéité remarquablement élevée des joints(K)demeure inchangée au delà de 48 heures. Lorsque la vanne est de nouveau démontée puis mise sous vide, il faut encore attendre 48 heures pour réaliser la même étanchéité.Nous pensons que cette durée est celle qui est nécessaire à l'obturation par les molécules de l'air des rugosités microscopiques existant dans chacun des joints formés par

la pénétration d'une arête de métal dur (kovar) dans un métal mou (cuivre), comme il le sera précisé plus loin. Le même phénomène est observé avec le pointeau conique simple(G).

La conductance de fuite des joints(K) kovar-cuivre et acier inoxydable-cuivre (figure 10) à l'intérieur desquels s'exerce le vide primaire, n'intervient pas dans la détermination de la conductance de fuite du pointeau (G) et du joint (K) kovar-cuivre (figure 10) soumis intérieurement à un vide très élevé.

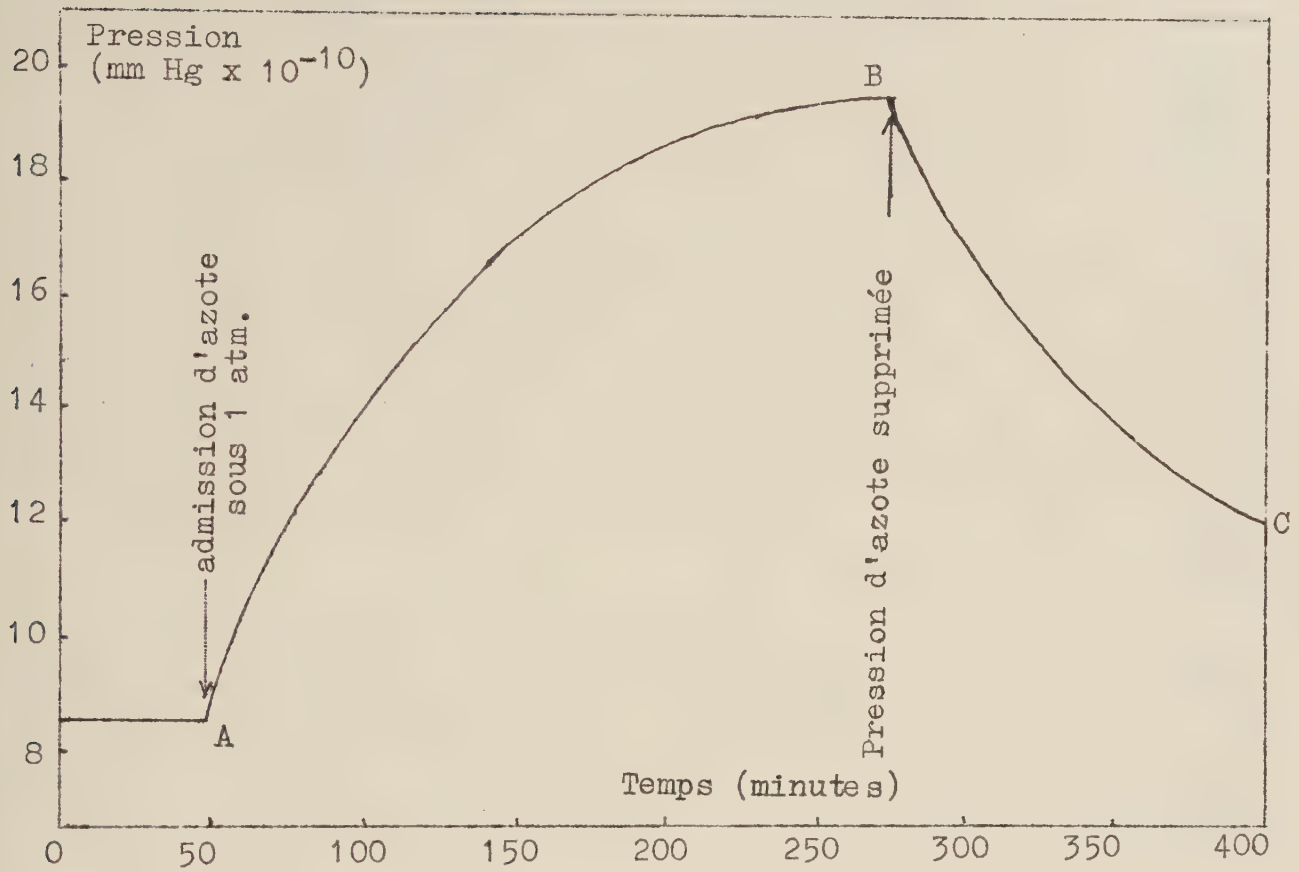
La conductance de fuite du pointeau (G) est de l'ordre de $4,5 \times 10^{-13}$ l/sec.(méthode I) lorsque la pression dans l'enceinte à vide primaire est de 3×10^{-3} mm Hg. Cette valeur est en bon accord avec celle obtenue par la méthode II à l'aide de l'équation (3) (point B, $\Delta p = 3,4 \times 10^{-8}$ mm Hg, conductance de fuite $C = 9 \times 10^{-14}$ l/sec.). La concordance observée tend à montrer que les deux méthodes de mesure des conductances de fuite fournissent des valeurs comparables et se portent ainsi une confirmation mutuelle.

Cependant la courbe obtenue par la méthode II (figure 17) a une allure différente de celle tracée par Bills et Allen (figure 18). En effet, après l'admission de l'air atmosphérique dans l'enceinte primaire (figure 17), la pression dans la rampe à vide très élevé augmente rapidement (AB) et se stabilise pendant quelques minutes (BC). Ensuite la pression diminue progressivement et atteint au bout de 18 heures de fonctionnement continu de la jauge à ionisation (point E) une valeur identique à celle du point A à l'origine de l'expérience. Après 42 heures (point F) le vide limite semble atteint.

Par contre, la diminution de pression observée (portion C D E F, figure 17) ne se produit pas, dans l'expérience de Bills et Allen, tant que la pression d'une atmosphère d'azote s'exerce dans l'enceinte à vide primaire (A B, figure 18).

Il est probable que le phénomène traduit par la courbe de la figure 17 s'explique en supposant, comme cela a été fait pour les joints (K), qu'il y a obturation par des molécules de l'air

Figure 18 - Expérience de Bills et Allens (12)



qui s'adsorbent sur les sillons superficiels de dimensions moléculaires du joint formé par le pointeau (G) et son assise en cuivre. En effet, la partie(A B C D) de la courbe en cloche ne peut être attribuée à une variation de la vitesse de pompage de la jauge avec la pression puisqu'aux points isobares p_i et p'_i , pour la même vitesse de pompage, les variations de la pression sont de sens contraire. Il faut donc admettre qu'en p'_i la conductance de fuite du pointeau de la vanne doit être inférieure à celle qui existe en p_i.

Cette obturation ne peut être attribuée à des molécules de grandes dimensions provenant de l'huile de la pompe à diffusion (l'huile Apiezon C est un mélange d'hydrocarbures). En effet la même expérience réalisée en refroidissant à l'oxygène liquide (figure 17) le piège L_1 (figure 9) se traduit par le même phénomène d'augmentation puis de diminution de la pression.

Il semble donc que l'obturation progressive des rugosités du joint d'étanchéité du pointeau (G) soit due aux molécules des gaz de l'air. Cette obturation paraît terminée après 42 heures, durée du même ordre de grandeur que celle qui est nécessaire pour que les joints(K) de la vanne acquièrent une étanchéité très élevée.

Les molécules de gaz fixées sur le joint d'étanchéité sont probablement adsorbées chimiquement sur les parois des sillons dégazés pendant le chauffage de la vanne. L'établissement d'une pression de 3×10^{-3} mm Hg pendant 2 heures dans l'enceinte à vide primaire (portion FG, figure 17), suivi d'une nouvelle admission de la pression atmosphérique (point G) n'entraînent aucune variation de la pression dans la rampe à vide très élevé (portion GH), à la précision de nos mesures près.

Au point G, lorsque la pression atmosphérique est de nouveau réalisée, la conductance de fuite du pointeau est inférieure à 10^{-17} l/sec. car la variation Δp résultante se traduirait sur le galvanomètre le plus sensible dont nous disposons par une augmentation du courant ionique d'un dixième de graduation.

Afin de tenter d'obtenir un ordre de grandeur de la conductance de fuite de la vanne après obturation (qui est celle existant au point G,(figure 17), nous avons utilisé la méthode I et tracé la courbe d'augmentation de la pression avec le temps dans l'enceinte à vide très élevé, la pression atmosphérique étant établie dans le vide primaire (figure 19). Les mesures de la pression ont été faites dans les mêmes conditions expérimentales que celles réalisées pour tracer la courbe de la figure 15 représentative de la méthode I.

La conductance de fuite du pointeau, déterminée à l'aide de la courbe de la figure 19, entre les points 0 et 117 heures, est d'environ 10^{-18} l/sec., valeur en bon accord avec la limite supérieure déterminée par la méthode II (10^{-17} l/sec.).

La comparaison des résultats de nos expériences (figure 17) en vue de l'application de la méthode II,avec ceux de Bills et Allen (figure 18) permet de constater que ces auteurs n'ont pas

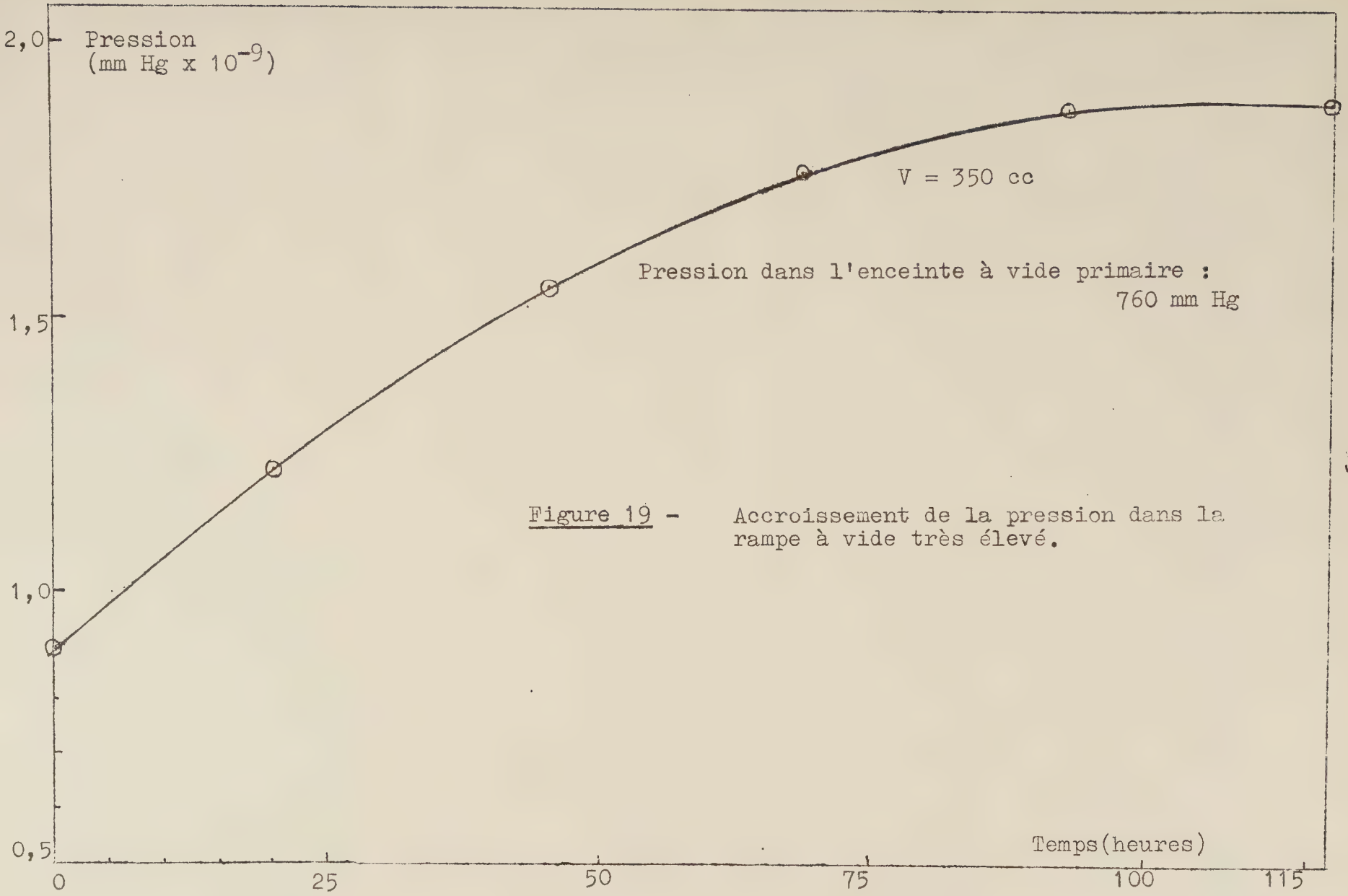


Figure 19 - Accroissement de la pression dans la rampe à vide très élevé.

observé de diminution de pression jusqu'à la valeur initiale, après la rapide augmentation due à l'introduction d'azote sous une atmosphère dans l'enceinte à vide primaire. La conductance de fuite de leur vanne est cependant du même ordre de grandeur que celle de la vanne décrite ici, avant son obturation par les molécules de l'air. Ceci laisse supposer que les rugosités du joint formé par le pointeau et l'assise de leur vanne ont des dimensions comparables à celles de notre dispositif. La différence de comportement de ces deux types de joints vis-à-vis de la pression d'une atmosphère réside sans doute dans le fait que Bills et Allen introduisent de l'azote (et non de l'air), gaz qui ne s'adsorbe pas chimiquement à la température ambiante sur l'argent et le nickel (métaux constitutifs du joint d'étanchéité du pointeau de leur vanne), alors que dans le cas de notre vanne, l'oxygène peut se chimisorber sur l'acier et le cuivre.

Ainsi les valeurs numériques des conductances de fuite des joints (K) et du pointeau (G) obturés par les gaz de l'air, déterminées par la méthode I sont de 10^{-19} l/sec. et 10^{-18} l/sec. respectivement. Cette constatation incite à penser que le joint d'un type original formé par la pénétration d'une arête circulaire d'un métal dur dans un métal malléable a des qualités au moins aussi bonnes que celles du joint conventionnel formé par le pointeau conique et son assise. Nous avons donc conçu puis réalisé un pointeau (GK) d'un type nouveau (figure 12).

Cet organe comporte un pointeau conique entouré d'une partie circulaire biseautée suivant un angle de 45°. Son étanchéité et sa tenue au vide se sont avérées excellentes puisqu'il est impossible de lui attribuer une quelconque conductance de fuite par la méthode II, dès l'admission d'air à la pression atmosphérique. Ce résultat s'explique sans doute par le fait qu'entre les enceintes sous les pressions extrêmes de 760 mm Hg et 10^{-9} mm Hg s'exerçant de part et d'autre du pointeau (GK), il existe un volume compris entre le cône du pointeau et l'arête circulaire où s'établit, après le dégazage, une pression réduite de 10^{-7} mm Hg tout au plus .

L'obturation par les molécules de l'air, lorsque la pression atmosphérique est admise dans l'enceinte primaire, se produit probablement, dans les sillons joignant cette enceinte au volume intermédiaire défini ci-dessus. La vitesse de passage des gaz depuis ce volume intermédiaire jusqu'à l'enceinte à vide très élevé doit être minime à cause du faible gradient de pression existant entre ces deux espaces.

En résumé, le nouveau type de vanne équipée d'un pointeau conique simple (G) (figure 10) a une conductance de fuite qui varie entre 10^{-13} l/sec. avant l'obturation des sillons des joints d'étanchéité par la chimisorption des gaz de l'air, à une valeur aussi faible que 10^{-18} l/sec.

L'obturation que nous croyons avoir mise en évidence dans le cas du pointeau (G) est celle qui confère au bout d'un temps comparable (48 heures) une étanchéité remarquablement élevée aux joints (K) de la vanne.

La réalisation d'un nouveau type de pointeau (GK) (figure 12) permet d'attribuer à la vanne une conductance de fuite sans doute très inférieure à 10^{-17} l/sec.

CONCLUSION

Les vides très élevés ont de nombreuses applications et constituent notamment un moyen d'étude des phénomènes physico-chimiques de surface.

C'est en vue de la détermination de la cinétique de l'adsorption chimique de quelques gaz sous de très faibles pressions sur des alliages métalliques que nous avons construit et mis au point un appareillage capable d'atteindre et de maintenir des pressions de l'ordre de 10^{-10} mm Hg.

La pièce essentielle de cet ensemble est la vanne qui doit permettre d'isoler de la pression atmosphérique, ou de pressions inférieures, l'enceinte dans laquelle est réalisé un vide très élevé.

Après avoir tenté de découvrir les raisons pour lesquelles les quelques vannes existantes ne donnent pas entière satisfaction à leurs utilisateurs, nous avons contribué à la réalisation d'une vanne métallique d'un type nouveau, ne comportant aucune brasure et de surcroît entièrement démontable.

Nous avons constaté de façon reproductible qu'un chauffage de la vanne et de la rampe à vide secondaire, pendant 3 heures à 200°C, suffit pour obtenir des pressions d'environ 10^{-10} mm Hg. Ces normes de dégazage entièrement nouvelles pour des appareillages de ce type, sont cependant suffisantes pour obtenir des pressions finales aussi basses.

La très faible conductance de fuite de la vanne (probablement de l'ordre de 10^{-18} l/sec.) due à une obturation partielle à l'échelle moléculaire de ses joints d'étanchéité par les gaz de l'air et l'action pompante importante des parois métalliques et en verre de l'enceinte sous très faible pression ont été nettement mises en évidence. Ces qualités expliquent sans doute qu'un dégazage

à une température modérée permet d'atteindre des vides très élevés à l'aide d'une jauge à ionisation. Il est possible qu'un chauffage de l'ensemble à des températures plus hautes et durant des temps plus longs se traduise par l'obtention de vides encore meilleurs, difficiles toutefois à mesurer avec notre dispositif expérimental.

Nous pensons ainsi avoir montré les difficultés rencontrées dans la mesure des très faibles pressions et nous apportons des solutions nouvelles pour réaliser des enceintes sous vide très élevé. Les performances de ces appareillages doivent être formulées selon des normes très rigoureuses que nous espérons avoir mises en relief de façon suffisamment nette.

BIBLIOGRAPHIE

1- Progress in Vacuum Science and Technology, Pergamon Press, 1959

2- D. Alpert, J.Appl.Phys. 24, 860 (1953)

3- W.M.H. Sachter, G.J.H.Dorgelo, J.Chim.Phys. 54, 27 (1957)

4- R.Suhrmann , Adv.in Catalysis 7, 303-350 (1955)

5- R.Suhrmann, Schulz, Z.Phys.Chem. NF 1, 69 (1954)

6- R.Suhrmann, Schulz, J.Coll.Sci.Suppl. 1, 50 (1954)

7- R.Suhrmann, Z.Elektrochem. 60, 804 (1956)

8- R.Suhrmann, Chemisorption London, 106 (1957)

9- J.C.P.Mignolet, Disc.Farad.Soc. 8, 105, 326 (1950)

10- C.Guillaud, Thèse Lyon 1959

11- R.T.Bayard, D.Alpert, Rev.Sci.Instr. 21, 571 (1950)

12- D.G.Bills, F.G.Allen, Rev.Sci.Instr. 26, 654 (1955)

13- P.A.Redhead, 5^{e} Congrès national sur la Technologie du vide, San Francisco Californie- Octobre 1958

14- D.Alpert, Rev.Sci.Instr. 24, 1004 (1953)

15- R.H.Davis, A.S.Divartia, Rev.Sci.Instr. 25, 1193 (1954)

16- J.A.Becker, C.D.Hartman, J.Phys.Chem. 57, 153 (1953)

17- Richardson, Chaklin, Proc.Roy.Soc. A110 , 247 (1926)

18- W.B.Nottingham Communication privée, voir (2)

19- N.D.Morgoulis, J.Tekhn. Fiz. SSSR 1, 51 (1931)

20- N.D.Morgoulis Id. 3, 1276 (1933)

21- L.P.Khavkine Id. 26, 10, 2356-2360 (1956)

22- J.P.Hobson, P.A.Redhead, Canad.J.Phys. 36, 271 (1958)

23- P.A.Redhead, Report of 18th Annual Conference on Physical Electronics M.I.T. 1958

24- R.Haefer, Revue Universelle des Mines, de la Métallurgie, de la Mécanique, 9^{e} série, tome XIV, 21-29 (1958)

25- Guthrie, Wakerling, Vacuum Technique and Equipment, Mc Graw Hill Book Co, p.164 (1949)

26- H.Bottazzi, Brevet C.N.R.S. - Novembre 1959

TABLE DES MATIERES

Pages

Avant-Propos 1

INTRODUCTION 2

CHAPITRE I - Obtention et mesure des vides très élevés..... 5

- Obtention du vide très élevé 5
- Mesure du vide très élevé 11
- Détection des fuites dans les enceintes sous vide très élevé 18

CHAPITRE II - Dispositif expérimental pour la réalisation du vide très élevé 21

- Réalisation de pressions de 10^{-7}mm Hg 21
- Vanne pour vide très élevé 24

Description 28

- Enceinte à vide secondaire 31

CHAPITRE III - Conditions d'utilisation et performances de l'appareillage à vide très élevé 35

- Conditions d'utilisation de l'appareillage 35
- Performances de l'appareillage 38

Influence sur le vide limite d'un piégeage à l'azote liquide 44

Conductance de la vanne 46

.Conductance de fuite des joints (K)... 47
.Conductance de fuite du pointeau(G)... 48

CONCLUSION 58

Bibliographie 60

Vu :
Les Membres du Jury,

M.M. M.PRETTRE
S.TEICHNER
J-C.MERLIN

Vu et approuvé
Le Doyen de la Faculté des Sciences

M.MOUSSA

Vu et accordé le permis d'imprimer :

LYON, le 1er Décembre 1959

Le Recteur,

Président du Conseil de l'Université

A.ALLIX